



SKRIPSI

**PERBANDINGAN *TEMPLATE* ORGANIK  
TPABr DAN TPAOH PADA SINTESIS ZSM-5  
DARI KAOLIN BANGKA**

HANI RAHMAWATI  
NRP 1411 100 077

Pembimbing  
Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc.

JURUSAN KIMIA  
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember  
Surabaya  
2015



SCRIPT

# **COMPARISON OF TPABr AND TPAOH AS ORGANIC TEMPLATES ON SYNTHESIS OF ZSM-5 FROM KAOLIN BANGKA**

HANI RAHMAWATI  
NRP 1411 100 077

Supervisor  
Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc.

DEPARTMENT OF CHEMISTRY  
Faculty of Mathematics and Natural Sciences  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember  
Surabaya  
2015

**PERBANDINGAN *TEMPLATE* ORGANIK TPABr DAN  
TPAOH PADA SINTESIS ZSM-5 DARI KAOLIN BANGKA**

**SKRIPSI**

Diajukan untuk Memenuhi Salah Satu Syarat  
Memperoleh Gelar Sarjana Sains  
pada  
Program Studi S-1 Jurusan Kimia  
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Oleh:  
**HANI RAHMAWATI**  
NRP. 1411 100 077

**JURUSAN KIMIA  
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM  
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER  
SURABAYA  
2015**

## LEMBAR PENGESAHAN

**PERBANDINGAN *TEMPLATE* ORGANIK TPABr DAN  
TPAOH PADA SINTESIS ZSM-5 DARI KAOLIN BANGKA**

### SKRIPSI

Disusun Oleh :

**HANI RAHMAWATI**  
**NRP. 1411 100 077**

Surabaya, 23 Januari 2015

Menyetujui,  
Dosen Pembimbing



**Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc**  
**NIP. 19710616 199703 1 002**

Mengetahui,  
Ketua Jurusan Kimia



**Hamzah Fansuri, Ph.D.**  
**NIP. 19691017 199412 1 001**

## **PERBANDINGAN *TEMPLATE* ORGANIK TPABr DAN TPAOH PADA SINTESIS ZSM-5 DARI KAOLIN BANGKA**

**Nama** : Hani Rahmawati  
**NRP** : 1411100077  
**Jurusan** : Kimia FMIPA-ITS  
**Dosen Pembimbing** : Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc.

### **Abstrak**

Sintesis ZSM-5 dari kaolin Bangka dan abu sekam padi sebagai sumber silika dan alumina telah dipelajari. ZSM-5 disintesis untuk membandingkan *template* organik TPABr dan TPAOH menggunakan metode hidrotermal dengan variasi waktu kristalisasi 3, 6, 9, 12, 24, dan 48 jam. Pada penelitian ini ZSM-5 disintesis dengan komposisi molar  $10\text{Na}_2\text{O} : 100\text{SiO}_2 : 2\text{Al}_2\text{O}_3 : 2000\text{H}_2\text{O} : 20\text{TPA}$  menggunakan metode hidrotermal pada suhu  $175^\circ\text{C}$ . Hasil padatan dikarakterisasi menggunakan teknik difraksi sinar-X (XRD) dan spektroskopi inframerah (FTIR) yang menunjukkan bahwa ZSM-5 mulai terbentuk pada sampel dengan waktu kristalisasi 24 dan 48 jam menggunakan *template* organik TPABr dan TPAOH. Berdasarkan intensitas yang diperoleh, sampel dengan *template* organik TPABr menghasilkan kristalinitas ZSM-5 yang lebih tinggi dan intensitas fasa analsim yang rendah. Pembentukan kristal ZSM-5 lebih cepat pada sampel yang menggunakan *template* organik TPABr dibandingkan *template* organik TPAOH dengan lama waktu kristalisasi 24 jam.

**Kata Kunci:** Kaolin Bangka, abu sekam padi, sintesis ZSM-5, TPABr, TPAOH.

# **COMPARISON OF TPABr AND TPAOH AS ORGANIC TEMPLATES ON SYNTHESIS OF ZSM-5 FROM KAOLIN BANGKA**

**Name** : Hani Rahmawati  
**NRP** : 1411100077  
**Department** : Kimia FMIPA-ITS  
**Supervisor** : Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc.

## **Abstract**

Synthesis of ZSM-5 from kaolin Bangka and rice husk ash as a source of silica and alumina has been studied. ZSM-5 was synthesized to compare the organic templates TPABr and TPAOH using hydrothermal method with variation of crystallization time 3, 6, 9, 12, 24, and 48 hours. In this research ZSM-5 synthesized with molar composition  $10\text{Na}_2\text{O} : 100\text{SiO}_2 : 2\text{Al}_2\text{O}_3 : 2000\text{H}_2\text{O} : 20\text{TPA}$  using hydrothermal method in  $175^\circ\text{C}$  temperature. The solid results were analyzed using X-ray diffraction (XRD) and infrared spectroscopy (FTIR) showed that ZSM-5 began to form on the sample at the time 24 and 48 hours of crystallization using both organic templates TPABr and TPAOH. Based on the intensity obtained, the sample with an organic template TPABr produced a higher ZSM-5 crystallinity and low intensity of analcime phase. The formation of ZSM-5 crystalline was faster in the sample using organic templates TPABr compared to organic templates TPAOH at 24 hours of crystallization time.

**Keywords:** Kaolin Bangka, rice hush ash, ZSM-5 synthesis, TPABr, TPAOH.

## KATA PENGANTAR

Puji syukur kehadiran Allah SWT yang selalu melimpahkan rahmat dan karunia-Nya, sehingga penulis dapat menyelesaikan tugas akhir ini yang berjudul “**Perbandingan *Template Organik TPABr dan TPAOH* pada Sintesis ZSM-5 dari Kaolin Bangka**”. Dengan penuh kerendahan hati, penulis menyampaikan terima kasih sebesar-besarnya kepada:

1. Bapak Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc, selaku dosen pembimbing yang telah memberikan pengarahan dan bimbingan selama proses penyusunan naskah tugas akhir ini.
2. Bapak Hamzah Fansuri, M.Si, Ph.D. selaku Ketua Jurusan Kimia atas fasilitas yang telah diberikan.
3. Bapak Lukman Atmaja, Ph.D, selaku kepala laboratorium Kimia Material dan Energi yang telah memberikan fasilitas selama pengerjaan tugas akhir ini.
4. Kedua orang tua dan keluarga besar saya yang selalu memberi dukungan, doa, serta semangat yang tiada henti.
5. Sahabat-sahabat saya yang selalu memberikan semangat dan menghibur selama pengerjaan tugas akhir ini (Distik, Acil, Cipika, Nenita, Rise, Dewa).
6. Teman-teman mahasiswa Kimia FMIPA angkatan 2011 beserta rekan-rekan seperjuangan di Laboratorium KME atas semua bantuan, semangat, dan doanya.

Penulis menyadari bahwa penulisan tugas akhir ini masih jauh dari sempurna, oleh karena itu penulis mengharapkan kritik dan saran yang membangun. Semoga tugas akhir ini dapat memberikan manfaat bagi penulis dan pembaca.

Surabaya, 8 Januari 2015

Penulis

## DAFTAR ISI

<b>HALAMAN JUDUL</b> .....	i
<b>LEMBAR PENGESAHAN</b> .....	iv
<b>ABSTRAK</b> .....	vi
<b>KATA PENGANTAR</b> .....	viii
<b>DAFTAR ISI</b> .....	ix
<b>DAFTAR GAMBAR</b> .....	xi
<b>DAFTAR TABEL</b> .....	xiii
<b>DAFTAR LAMPIRAN</b> .....	xiv
 <b>BAB I. PENDAHULUAN</b> .....	 1
1.1 Latar Belakang .....	1
1.2 Perumusan Masalah .....	3
1.3 Batasan Penelitian .....	3
1.4 Tujuan Penelitian .....	3
1.5 Manfaat Penelitian .....	4
 <b>BAB II. TINJAUAN PUSTAKA</b> .....	 5
2.1 Kaolin .....	5
2.2 Zeolit.....	7
2.2.1 Tinjauan Umum tentang Zeolit.....	7
2.2.2 Struktur Zeolit.....	8
2.2.3 Sintesis Zeolit.....	9
2.3 ZSM-5 .....	11
2.4 Sintesis ZSM-5.....	12
2.5 Hidrotermal.....	14
2.6 Pengaruh Penggunaan <i>Template</i> Organik.....	15
2.7 Karakterisasi ZSM-5.....	18
2.7.1 Difraksi Sinar-X.....	18
2.7.2 Spektroskopi <i>Fourier Transform Infrared</i> (FTIR).....	20



<b>BAB III. METODOLOGI</b> .....	23
3.1 Alat dan Bahan .....	23
3.1.1 Alat dan Instrumentasi.....	23
3.1.2 Bahan .....	23
3.2 Prosedur Kerja .....	24
3.2.1 Preparasi ZSM-5.....	24
3.2.2 Sintesis ZSM-5 dengan <i>Template</i> Organik TPABr.....	24
3.2.3 Sintesis ZSM-5 dengan <i>Template</i> Organik TPAOH...	25
3.3 Karakterisasi Padatan.....	25
3.3.1 Difraksi Sinar-X.....	25
3.3.1 Spektroskopi Inframerah (FTIR).....	26
 <b>BAB IV. HASIL DAN PEMBAHASAN</b> .....	27
4.1 Sintesis ZSM-5.....	27
4.2 Karakterisasi ZSM-5 .....	28
4.2.1 Difraksi Sinar-X.....	28
4.2.2 Spektroskopi <i>Fourier Transform Infrared</i> (FTIR).....	38
 <b>BAB V. KESIMPULAN DAN SARAN</b> .....	45
5.1 Kesimpulan .....	45
5.2 Saran .....	45
 <b>DAFTAR PUSTAKA</b> .....	47
<b>LAMPIRAN</b> .....	55
<b>BIODATA PENULIS</b> .....	75

## DAFTAR TABEL

Tabel 2.1	Pengaruh jenis template pada kristalinitas, luas permukaan dan ukuran kristal rata-rata sampel yang disintesis.....	16
Tabel 4.1	Fasa kristalin pada waktu kristalisasi dan <i>template</i> yang berbeda.....	33
Tabel 4.2	Intensitas dari pola XRD sampel dengan waktu kristalisasi 3, 6, 9, 12, 24, dan 48 jam.....	30
Tabel 4.3	Puncak pada sampel dalam $\text{cm}^{-1}$ spektra inframerah dengan variasi waktu kristalisasi dan <i>template</i> .....	43

## DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1	Struktur atom dari kaolin (Das, 1998).....	5
Gambar 2.2	Tetrahedra alumina dan silika $\text{TO}_4$ pada struktur zeolit.....	9
Gambar 2.3	Unit Bangun Sekunder Struktur Zeolit.....	9
Gambar 2.4	Skema konstruksi kerangka ZSM-5 (Breck, 1974).....	11
Gambar 2.5	Sistem pori ZSM-5 (Froment dkk., 1992)....	12
Gambar 2.6	SEM dari ZSM-5 pada variasi waktu reaksi 10 jam dan 24 jam (Kim dkk., 2003).....	12
Gambar 2.7	Ilustrasi difraksi sinar-X pada permukaan spesimen (Brundle dkk., 1992).....	19
Gambar 2.8	Pola XRD dari sampel ZSM-5 (a) metakaolin (amorf) (b) sampel ZSM-5 tanpa template (c) sampel TPA-ZSM-5 yang sudah dikalsinasi (Pan dkk., 2014).....	20
Gambar 2.9	Skema Alat FTIR (Sibilia, 1996).....	21
Gambar 2.10	Spektra inframerah dari sampel ZSM-5 (a) metakaolin (amorf) (b) sampel ZSM-5 tanpa template (c) sampel TPA-ZSM-5 yang sudah dikalsinasi (Pan dkk., 2014).....	22
Gambar 4.1	Pola difaktogram sinar-X sampel (a) kaolin, sampel dengan <i>template</i> organik TPABr waktu kristalisasi (b) 3 jam, (c) 6 jam, (d) 9 jam, (e) 12 jam, (f) 24 jam, dan (g) 48 jam.....	31
Gambar 4.2	Pola difaktogram sinar-X sampel (a) kaolin, sampel dengan template organik TPAOH waktu kristalisasi (b) 3 jam, (c) 6 jam, (d) 9 jam, (e) 12 jam, (f) 24 jam, dan (g) 48 jam.....	32

Gambar 4.3	Pola XRD dari sampel abu sekam padi.....	34
Gambar 4.4	Grafik kelarutan bahan dasar sintesis ZSM-5 dan pembentukan fasa tiap waktu kristalisasi menggunakan template TPABr.....	36
Gambar 4.5	Grafik kelarutan bahan dasar sintesis ZSM-5 dan pembentukan fasa tiap waktu kristalisasi menggunakan template TPAOH.....	37
Gambar 4.6	Spektra inframerah sampel (a) kaolin, sampel dengan <i>template</i> organik TPABr waktu kristalisasi (b) 3 jam, (c) 6 jam, (d) 9 jam, (e) 12 jam, (f) 24 jam, dan (g) 48 jam.....	40
Gambar 4.7	Spektra inframerah sampel (a) kaolin, sampel dengan <i>template</i> organik TPAOH waktu kristalisasi (b) 3 jam, (c) 6 jam, (d) 9 jam, (e) 12 jam, (f) 24 jam, dan (g) 48 jam.....	41

# **BAB I**

## **PENDAHULUAN**

### **1.1 Latar Belakang**

Zeolit merupakan material yang telah banyak diteliti memiliki banyak kegunaan. Zeolit hingga saat ini banyak diaplikasikan sebagai katalis, adsorben, dan penukar ion. Zeolit adalah mineral kristal alumina silika terhidrat berpori yang mempunyai struktur kerangka tiga dimensi. Zeolit terbentuk oleh tetrahedral  $[\text{SiO}_4]^{4-}$  dan  $[\text{AlO}_4]^{5-}$  yang saling terhubung dengan adanya atom-atom oksigen sehingga membentuk kerangka tiga dimensi terbuka yang mengandung rongga-rongga berisi ion logam. Ion logam ini biasanya adalah ion logam alkali atau alkali tanah dan molekul air yang dapat bergerak bebas (Chetam, 1992).

Salah satu zeolit yang paling umum digunakan adalah ZSM-5. ZSM-5 merupakan salah satu zeolit yang paling banyak dipelajari karena aplikasinya pada banyak bidang seperti pemisahan gas atau cairan dan sintesis bahan kimia sebagai katalis padat. ZSM-5 saat ini dikenal sebagai aluminosilikat mikropori kristalin yang memiliki kerangka tiga dimensi (Louis dkk., 2004). Jenis kerangka yang dimiliki ZSM-5 adalah kerangka tipe MFI (*Modernite Framework Inverted*) dengan diameter pori sebesar 0,54 nm. ZSM-5 biasanya disintesis dengan kation natrium yang berfungsi sebagai ion penyeimbang untuk kerangka bermuatan negatif. Ion natrium selanjutnya dapat diganti dengan kation lain yang mampu memasuki pori-pori selama modifikasi sintesis zeolit (Petushkov dkk., 2011).

Pada penelitian ini digunakan kaolin Bangka dan abu sekam padi sebagai sumber silika dan alumina pada sintesis ZSM-5 dengan penggunaan *template* organik TPABr dan TPAOH serta variasi waktu kristalisasi. Beberapa macam zeolit telah berhasil disintesis dengan menggunakan kaolin sebagai sumber silika dan alumina. Kaolin banyak digunakan untuk sintesis zeolit karena memiliki kandungan utama berupa Si dan Al. Contohnya modernite yang telah disintesis dari kaolin dengan metode

hidrotermal selama 12, 24, dan 36 jam dengan suhu 170 °C (Mignoni dkk., 2008). Ketika dilakukan kalsinasi pada suhu 600 °C, kaolin akan kehilangan air kristal dan berubah menjadi metakaolin sehingga dapat digunakan dalam sintesis zeolit (Vesely dkk., 2012). Zeolit lainnya yaitu analsim yang berhasil disintesis dari kaolin yang dikalsinasi pada suhu 900 °C selama 3 jam menjadi metakaolin (Atta dkk., 2012). Sintesis yang pernah dilakukan lainnya yaitu untuk mendapatkan fasa zeolit NaX murni dengan kristalinitas yang tinggi dari kaolin pada kondisi optimum menjadi metakaolin dari tanah liat pada suhu 900 °C selama 1 jam (Chandrasekhar dan Pramada, 1999). Selain itu, sintesis ZSM-5 dilaporkan juga pernah dilakukan dari abu sekam padi sebagai sumber silika. Abu sekam padi hasil dari pembakaran sekam padi di udara menghasilkan formasi abu sekam padi dengan kandungan SiO<sub>2</sub> yang bervariasi antara 85%-98% dan dapat digunakan sebagai alternatif sumber silika amorf yang murah. Silika amorf banyak digunakan pada bidang elektronik, mekanik, seni, dan sebagai penghasil senyawa kimia termasuk ZSM-5 (Kordatos dkk., 2008).

*Template* saat ini menjadi hal yang penting untuk preparasi dan pengolahan material pada sintesis ZSM-5 baik *template* organik maupun anorganik. Pada umumnya untuk sintesis ZSM-5 digunakan beberapa macam *template* organik. Posisi atom pada kerangka sesuai dengan lingkungan tetrahedral oksigen di sekitar silikon. Molekul *template* dari tetrapropilamonium (TPA<sup>+</sup>) fluorida atau bromida atau hidroksida, yang diperlukan untuk pertumbuhan dan stabilisasi dari kristal ZSM-5 dan berada pada kristal yang disintesis, tidak selalu diketahui letaknya (Koningsveld dkk., 1987). *Template* organik yang paling sering digunakan adalah tetrapropilamonium bromida (TPABr) dan tetrapropilamonium hidroksida (TPAOH) yang berperan sebagai pengarah struktur (mikropori atau mesopori) atau agen penstabil struktur (Kordatos dkk., 2008). Fungsi dari *template* organik seperti TPABr atau TPAOH adalah untuk mengisi saluran internal tiga dimensi pada zeolit yang dapat mendorong struktur ZSM-5 selama proses kristalisasi dan dapat mencegah perubahan fasa setelah kristalisasi

ZSM-5 (Kim dkk., 2003). Peran dari agen organik pengarah struktur sama dengan proses kinetik pada kompleks seperti nukleasi dan kristalisasi (Shiralkar dkk., 1989).

Pada penelitian ini, ZSM-5 disintesis dari kaolin Bangka dan abu sekam padi menggunakan metode hidrotermal dengan *template* organik tetrapropilamonium bromida (TPABr) dan tetrapropilamonium hidroksida (TPAOH). Kaolin digunakan sebagai sumber silika dan aluminium dengan penambahan abu sekam padi sebagai sumber silika. Sintesis ZSM-5 dilakukan dengan variasi penggunaan *template* dan waktu kristalisasi untuk melihat pengaruh ion  $\text{OH}^-$  dan garam Br melalui kristalinitas. Padatan hasil sintesis kemudian dikarakterisasi dengan menggunakan teknik difraksi sinar-X (XRD) dan spektroskopi *Fourier Transform Infrared* (FTIR).

## 1.2 Perumusan Masalah

Permasalahan yang timbul dalam penelitian ini adalah bagaimana pengaruh penambahan *template* organik TPABr dan TPAOH terhadap pembentukan ZSM-5 dari kaolin Bangka dengan variasi waktu kristalisasi.

## 1.3 Batasan Penelitian

Batasan dalam penelitian ini yaitu:

1. Sintesis ZSM-5 menggunakan kaolin Bangka, NaOH, abu sekam padi, dan air demineralisasi.
2. Sintesis ZSM-5 dengan metode hidrotermal dengan *template* organik TPABr dan TPAOH.
3. Variasi waktu kristalisasi dalam sintesis ZSM-5 secara langsung adalah 3, 6, 9, 12, 24, dan 48 jam.

## 1.4 Tujuan Penelitian

Penelitian ini bertujuan untuk membandingkan penggunaan *template* organik TPABr dan TPAOH pada pembentukan ZSM-5 dari kaolin Bangka.

### **1.5 Manfaat Penelitian**

Sintesis ZSM-5 dari kaolin Bangka ini dapat memberikan manfaat dalam pembuatan katalis. Sintesis dengan menggunakan *template* organik TPABr dan TPAOH diharapkan dapat membentuk struktur kristal ZSM-5 yang sesuai dan dapat meningkatkan kristalinitas ZSM-5.

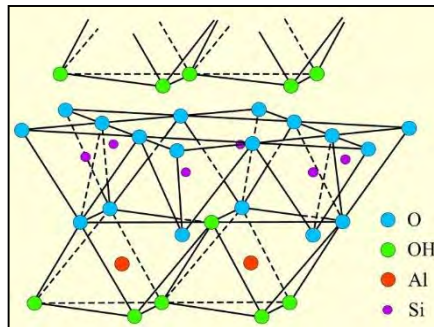


## BAB II

### TINJAUAN PUSTAKA

#### 2.1 Kaolin

Kaolin adalah bahan tambang alam yang merupakan salah satu jenis tanah lempung (*clay*) dimana tersusun dari mineral utama yang memiliki partikel mikroskopik dan submikroskopik berupa lempengan-lempengan tipis. Tanah lempung jenis ini berwarna putih keabu-abuan. Di alam, kaolinit berasal dari dekomposisi feldspar. Sebagai bahan tambang kaolin bercampur dengan oksida-oksida lainnya seperti kalsium oksida, magnesium oksida, kalium oksida, natrium oksida, besi oksida, dan lain-lain (Othmer, 1993).



Gambar 2.1 Struktur atom dari kaolin (Das, 1998).

Sifat fisik dan kimia dari kaolin menentukan penggunaannya sebagai mineral industri yang dipengaruhi oleh beberapa faktor seperti, kondisi geologi dimana kaolin yang terbentuk dan total komposisi mineralogi deposit kaolin. Kaolin memiliki ukuran sekitar 0,2 sampai 15  $\mu\text{m}$  dengan area spesifik 10,000-29,000  $\text{m}^2/\text{kg}$ . Kaolin kasar biasanya digunakan sebagai bahan pengisi (*filler*) sedangkan kaolin halus sebagai pelapis (*coater*), barang-barang tahan api dan isolator. Kegunaan kaolin sangat tergantung pada karakteristiknya karena akan berpengaruh terhadap kualitasnya. Bentuk dan distribusi kaolin penting dalam

mengendalikan banyak sifat lainnya seperti diameter ekivalen, dan sebagainya (Rashad, 2013).

Kaolin umumnya mengandung 10-95% dari kaolinit mineral, kuarsa, mika, feldspar, illite, montmorilonit, ilmenit, anastase, hematit, bauksit, zirkon, rutil, kyanite, silliminate, grafit, atapulgit, dan haloisit. Menurut struktur, kaolin dibentuk oleh struktur tetrahedral  $\text{SiO}_4$  dan  $\text{Al}(\text{O},\text{OH})_6([\text{Si}_2\text{O}_5]^{2-}$  dan  $[\text{AlOH}_4]^{2+})$  komposisi oktahedral dengan pseudo heksagonal simetri  $[\text{O}_6\text{Si}_4\text{O}_4(\text{OH})_2\text{Al}_4(\text{OH})_6]$ . Proses pembentukan kaolin disebut kaolinisasi.

Komposisi kimia kaolin secara teoritis adalah  $\text{SiO}_2$  46,54%;  $\text{Al}_2\text{O}_3$  39,50% dan  $\text{H}_2\text{O}$  13,96% (Prasad dkk., 1991; Murray, 2000). Potensi dan cadangan kaolin di Indonesia banyak terdapat di Kalimantan Barat, Kalimantan Selatan, dan Pulau Bangka dan Belitung, serta potensi lainnya tersebar di Pulau Sumatera, Pulau Jawa, dan Sulawesi Utara (Manado). Provinsi Kepulauan Bangka Belitung merupakan daerah yang potensial di bidang pertambangan, karena terdapat banyak tanah yang mengandung mineral bijih timah dan bahan galian yang tersebar merata, seperti kaolin, batu gunung, tanah liat, dan pasir kuarsa. Endapan kaolin bangka ini dapat dijumpai di beberapa tempat diantaranya daerah Badau, Dendang, Manggar, dan Membalong. Kaolin Bangka merupakan kaolin yang ditambang di Pulau Bangka Belitung berwarna putih, berbutir halus, lunak, dan lengket apabila basah, sebagian lagi berbentuk pasir. Kaolin di daerah ini memiliki kandungan besi dan titanium yang rendah sehingga memiliki tingkat kecerahan yang relatif tinggi. Endapan kaolin terjadi dari hasil pelapukan dan dekomposisi batuan feldspatik, dimana mineral-mineral kalium alumino silikat dan feldspar diubah menjadi kaolin. Dekomposisi atau proses kaolinisasi dari feldspar terjadi karena adanya air dan udara. Reaksi ini akan berlangsung sangat lama yang pada akhirnya terbentuk kaolinit. Kaolin pada umumnya digunakan penduduk lokal sebagai bahan baku keramik dan diekspor ke Jepang, Filipina, dan Taiwan yang digunakan sebagai pengisi (*filler*) dalam industri kertas. Karena kandungan

halosit dan smektit, menyebabkan viskositas kaolin menjadi tinggi sehingga tidak dapat digunakan sebagai pelapis kertas tanah liat (Murray, 2007).

## 2.2 Zeolit

### 2.2.1 Tinjauan Umum tentang Zeolit

Zeolit merupakan material aluminosilikat mikropori tiga dimensi dengan struktur kristalin yang baik. Kerangka zeolit dibangun oleh tetrahedral-tetrahedral  $\text{SiO}_4$  dan  $\text{AlO}_4^-$ . Kombinasi tetrahedral  $\text{SiO}_4$  dan  $\text{AlO}_4^-$  didasarkan pada aturan Lowenstein, yang menetapkan bahwa pada struktur zeolit dua tetrahedral  $\text{AlO}_4^-$  bertetangga tidak dapat terkoneksi melalui jembatan oksigen. Zeolit memiliki pori-pori berskala molekular dengan rentang ukuran 0,3–1,5 nm (Chester dkk., 2009). Zeolit adalah katalis yang sangat penting dalam industri terutama untuk *cracking* dan petrokimia. Selain itu, zeolit merupakan katalis hasil sintesis kimia yang baik dan ramah lingkungan (Cejka dkk., 2002). Beberapa contoh zeolit adalah ZSM-5, Zeolit Y, Zeolit Beta, dan Zeolit A. Diantara zeolit tersebut, ZSM-5 paling banyak digunakan sebagai katalis industri terutama transformasi hidrokarbon aromatik yang meliputi reaksi alkilasi, disproporsionasi, transalkilasi, dan isomerisasi (Iliyas, 2004).

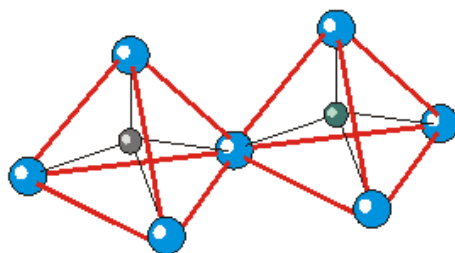
Berdasarkan asalnya, zeolit dapat dibedakan menjadi dua jenis, yaitu zeolit alam dan zeolit sintesis. Zeolit alam terbentuk karena adanya proses kimia dan fisika yang kompleks dari batubatuan yang mengalami berbagai macam perubahan di alam dan pembentukannya dipengaruhi oleh komposisi dari batuan induk, suhu, tekanan, pH, dan aktivitas ion tertentu. Zeolit hasil sintesis yang dibuat tidak sama persis dengan mineral zeolit alam. Walaupun zeolit sintesis memiliki sifat fisik yang jauh lebih baik. Zeolit sintesis diberi nama tersendiri seperti diambil dari nama penemunya, misalkan zeolit Linde tipe F, zeolit Linde tipe A, dan sebagainya. Proses pembentukan zeolit dapat menggunakan metode hidrotermal dengan bahan utamanya adalah aluminat silikat (gel) dan berbagai logam sebagai kation. Sifat fisik dari

reaktan, jenis kation, komposisi gel, serta kondisi kristalisasi sangat menentukan struktur zeolit yang dihasilkan. (Breck, 1987)

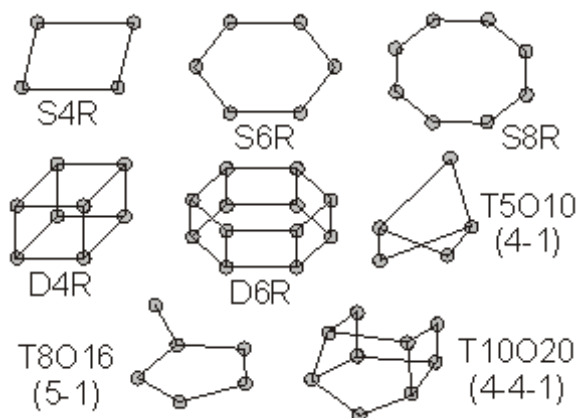
### 2.2.2 Struktur Zeolit

Seperti halnya mineral kuarsa dan feldspar, maka mineral zeolit mempunyai struktur kristal 3 dimensi tetrahedral silikat yang biasa disebut tektosilikat. Pada struktur ini sebagian silikon (tidak bermuatan atau netral) terkadang diganti oleh aluminium bermuatan listrik, sehingga muatan listrik kristal zeolit tersebut bertambah. Kelebihan muatan ini biasanya diimbangi oleh kation-kation logam K, Na, dan Ca yang menduduki tempat tersebar dalam struktur zeolit alam yang bersangkutan. Pada susunan kristal zeolit terdapat dua jenis molekul air, yaitu molekul air yang terikat kuat dan molekul air yang bebas. Berbeda dengan struktur kisi kristal kuarsa yang kuat dan pejal, maka struktur kisi kristal zeolit terbuka dan mudah terlepas (Smart dan Moore, 1993).

Struktur kerangka zeolit memiliki bentuk umum tetrahedral  $[\text{SiO}_4]_4^-$  dan  $[\text{AlO}_4]_5^-$  yang saling terhubung oleh atom oksigen. Struktur tiga dimensi dari zeolit merupakan unit tetrahedral dari  $\text{TO}_4$ , T bisa berupa aluminium atau silikon, yang berikatan dengan atom oksigen (Perego dkk., 1997). Zeolit tidak dapat diidentifikasi hanya berdasarkan analisa komposisi kimianya saja, melainkan harus dianalisa strukturnya. Struktur kristal zeolit dimana semua atom Si dan Al dalam bentuk tetrahedral ( $\text{TO}_4$ ) disebut Unit Bangun Primer, zeolit hanya dapat diidentifikasi berdasarkan Unit Bangun Sekunder (UBS) sebagaimana terdapat pada Gambar 2.2 dan 2.3.



Gambar 2.2 Tetrahedral alumina dan silika ( $\text{TO}_4$ ) pada struktur zeolit



Gambar 2.3 Unit bangun sekunder struktur zeolit

### 2.2.3 Sintesis Zeolit

Proses sintesis zeolit buatan bisa melewati dua rute: *solution – mediated transport* dan *solid phase transport*. Pada proses *solution – mediated transport*, prekursor dan pelarut dicampurkan dengan bahan katalis lain sehingga membentuk koloid. Partikel ini akan mengalami reaksi dengan pelarut sebagai medianya, membentuk koloid dengan partikel amorf. Koloid kemudian dipanaskan sehingga pelarut menguap, dan didapatkan partikel

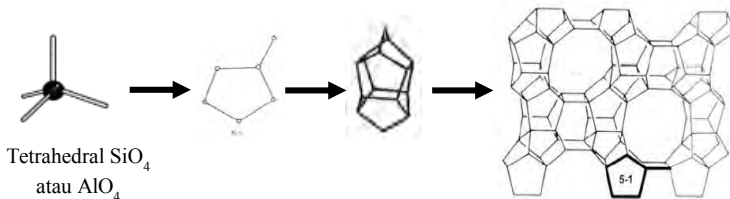
amorf. Proses pemanasan berikutnya, atau kalsinasi, dilakukan untuk memperbaiki morfologi kristal dan membentuk fasa kristalin. Pada proses *solid phase transport*, prekursor dan pelarut dicampurkan dengan *gelling agent*, membentuk fasa gel. Pemanasan dilakukan agar gel terkristalisasi, membentuk fasa solid amorf dalam larutan.

Sintesis dari zeolit sudah banyak diteliti hingga sekarang. Dilaporkan pada tahun 1862, St Claire Deville mensintesis zeolit dengan metode hidrotermal pertama Levynite (LEV). Selain itu sintesis *analcime* (ANA) juga dilaporkan pada tahun 1882 oleh Schulten. Pada tahun 1940 terakhir, Milton dan rekannya dapat mensintesis zeolit A (LTA), X (FAU), dan P (GIS) dengan cara kristalisasi hidrotermal dari gel aluminosilikat logam alkali reaktif pada suhu 1000 °C dan tekanan (autogenus) di bawah kondisi alkali tanah (pH biasanya diatas 12). Pada 1953, mereka mensintesis 20 zeolit, dimana 14-nya merupakan hasil sintesis. Pada tahun 1948, telah disintesis zeolit pertama dengan bahan sintesis yang dilaporkan sukses beberapa tahun berikutnya. Penelitian pertama kali dilakukan pada konversi fasa mineral dalam larutan garam kuat pada suhu tinggi (sekitar 170-2700 °C). (Barrer, 1982).

Silikat intermediet dari Zeolit A (LTA) disintesis menggunakan kation tetrametilamonium (TMA). Kerangka ratio Si/Al ditingkatkan dengan penambahan komponen *template* organik pada gel aluminosilikat. Hal ini dilakukan untuk mengetahui perkembangan yang signifikan dari sintesis zeolit. Penggunaan kation organik dengan gel aluminosilikat pada suhu 100-200 °C banyak dilakukan untuk sintesis zeolit. Seperti zeolit silika tinggi (BEA) dengan ratio Si/Al dengan batas antara 5 sampai 100 dibuat menggunakan kation tetraetilammonium serta zeolit silika tinggi ZSM-5 (MFI) disiapkan menggunakan kation tetrapropilamonium (Cejka dan Bekkum, 2007).

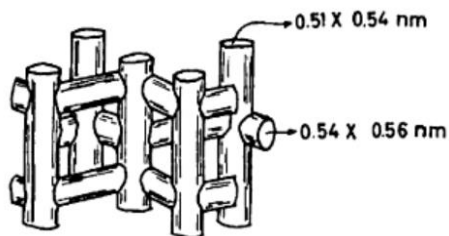
### 2.3 ZSM-5

ZSM-5 dikenal sebagai aluminosilikat mikropori kristalin yang memiliki kerangka tiga dimensi (Louis dan Minsker, 2004). ZSM-5 merupakan salah satu zeolit yang paling banyak dipelajari karena aplikasinya pada banyak bidang seperti pemisahan gas atau cairan dan sintesis bahan kimia sebagai katalis padat. *Zeolite Socony Mobil 5* (ZSM-5) merupakan zeolit sintetis yang pertama kali disintesis oleh Argauer dan Landolt dari *Mobil Oil Corporation* pada tahun 1972, dengan ukuran pori antara 0.51 - 0.55 nm. Formulasi umum ZSM-5 adalah  $\text{Na}_n [\text{Al}_n \text{Si}_{96-n} \text{O}_{192}] 16 \text{H}_2\text{O}$ , dimana  $n$  antara 3 sampai 27. Zeolit tersebut diberi akhiran 5 karena memiliki diameter pori sekitar 5 Å, perbandingan Si/Al sebagai parameter kristal zeolit selalu di atas 5, dan dibentuk berdasarkan pasangan 5-1 dari SBU (unit pembangun sekunder). Struktur primer ZSM-5 sama dengan struktur zeolit lainnya, yaitu tetrahedral  $\text{SiO}_4$  dan  $\text{AlO}_4$ . Tetrahedral tersebut akan saling sambung membentuk unit pembangun sekunder 5-1 atau unit pentasil. Unit-unit pentasil selanjutnya saling berhubungan membentuk rantai pentasil dan membentuk suatu lapisan. Pada tahap berikutnya lapisan-lapisan tersebut saling tumpang tindih membentuk kerangka ZSM-5 (Breck, 1974).



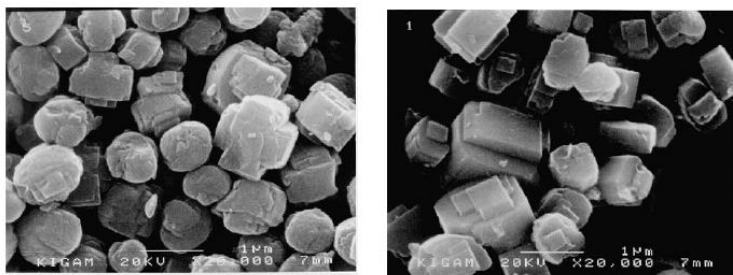
Gambar 2.4 Skema konstruksi kerangka ZSM-5 (Breck, 1974).

Di setiap satu lapis kerangka memiliki sistem pori terbuka yang terdiri atas 10 atom oksigen. Apabila masing-masing pori tersebut bergabung maka akan terbentuk sistem pori tiga dimensi yang memiliki dua arah yang saling berpotongan.



Gambar 2.5 Sistem pori ZSM-5 (Froment dkk., 1992).

ZSM-5 yang disintesis dari serpentin saat dikarakterisasi menggunakan SEM memiliki morfologi yang menunjukkan kristal berbentuk seperti bola dan kubik yang menghasilkan ZSM-5 (Kim dkk., 2003).



Gambar 2.6 SEM dari ZSM-5 pada variasi waktu reaksi 10 jam dan 24 jam (Kim dkk., 2003).

## 2.4 Sintesis ZSM-5

Sintesis ZSM-5 dari kaolin adalah masalah yang sangat penting, karena ZSM-5 memiliki beberapa sifat yang membuat mereka menjadi bahan yang menarik seperti sistem saluran pori yang baik, ukuran kristal yang baik dalam mikrometer, tingkat termal yang sangat tinggi dan stabilitas asam serta selektivitas dan aktivitas konversi katalitik tertentu dan potensinya dalam pemisahan hidrokarbon ringan (Wang dkk., 2007).



Penelitian tentang inovasi preparasi ZSM-5 semakin dikembangkan untuk mendapatkan reaktivitas yang diinginkan. Sintesis ZSM-5 dan zeolit jenis lainnya dari kaolin telah dilaporkan dengan berbagai variasi campuran reaktan, suhu hidrotermal, waktu hidrotermal, dan pH. Berbagai macam *template* organik telah banyak digunakan untuk sintesis ZSM-5 seperti kation tetrapropilamonium ( $\text{TPA}^+$ ) telah diketahui sebagai agen *template* yang paling efektif dan produk-produk ZSM-5 komersial banyak disintesis menggunakan *template* organik ini (Cundy dkk., 1995). Zeolit silika tinggi ZSM-5 (MFI) dapat disintesis menggunakan kation tetrapropilammonium (Čejka dan Bekkum, 2007).

ZSM-5 juga telah berhasil disintesis oleh Wang dkk., (2007) dengan menggunakan kaolin (sebagai sumber alumina) yang telah dikalsinasi selama 3 jam. Perbandingan komposisi molar bahan yang digunakan yaitu  $1,3\text{Na}_2\text{O} : \text{Al}_2\text{O}_3 : 5\text{SiO}_2 : 132\text{H}_2\text{O}$  dengan waktu hidrotermal selama 24 jam dan pH sebesar 10. Hasilnya menunjukkan bahwa ZSM-5 yang diperoleh dengan menggunakan kaolin menghasilkan aktivitas katalitik yang lebih baik dibandingkan ZSM-5 yang disintesis dengan metode biasa. Sintesis ZSM-5 lainnya dengan penggunaan *template* TPAOH (tetrapropilamonium hidroksida) dilakukan menggunakan natrium aluminat sebagai sumber aluminium dan *fumed silica* sebagai sumber silika. Waktu hidrotermal yang digunakan pada 45 jam dengan suhu  $230^\circ\text{C}$  menunjukkan hasil ZSM-5 yang paling optimal dengan kristalinitas sebesar 97,4% dan menghasilkan kristal berbentuk ortorombik berukuran 55,6 nm (Mohamed dkk., 2005). Selanjutnya pada tahun 2009 Feng dkk., telah berhasil mensintesis ZSM-5 dengan metode secara in-situ pada permukaan luar dari kaolinit yang telah dikalsinasi dengan adanya *n-butylamine*.

## 2.5 Hidrotermal

Hidrotermal merupakan teknik kristalisasi partikel dengan menggunakan temperatur tinggi dan tekanan uap yang tinggi. Penggunaan temperatur dan tekanan yang tinggi diakomodasikan dengan *autoclave*, dan media pelarutnya biasanya adalah air. Mineral yang dimasukkan (biasanya disebut dengan *nutrient*) ke dalam pelarut air akan mengalami reaksi, dan kristal akan tumbuh sesuai dengan gradien temperatur pada *autoclave* tersebut; daerah yang lebih panas akan melarutkan *nutrient*, sedangkan daerah yang lebih dingin akan menjadi tempat tumbuhnya kristal. Teknik hidrotermal merupakan salah satu metode yang cukup populer, terutama karena keuntungannya dalam proses pengolahan material nanostruktur untuk berbagai aplikasi teknologi seperti elektronik, optoelektronik, katalisis, keramik, penyimpanan data magnetik, biomedis, biophotonik, dan lain-lain. Istilah ‘hidrotermal’ sendiri merupakan istilah geologi yang pertama kali digunakan oleh ahli geologi Inggris, Sir Roderick Murchison (1792-1871) untuk menggambarkan tindakan air pada suhu dan tekanan yang tinggi, dalam perubahan kerak bumi menuju pembentukan berbagai batuan dan mineral (Lobachev, 1973).

Air adalah unsur penting dari setiap sistem hidrotermal. Air menunjukkan sifat yang unik, terutama dalam kondisi superkritis. Sifat ini telah dimanfaatkan secara tepat dalam beberapa tahun terakhir untuk menghancurkan bahan organik beracun dan mendaur ulang bahan limbah. Di alam, air juga memainkan peran penting dalam pembentukan batuan dan mineral dan dalam penciptaan kehidupan (asal usul kehidupan). Pada sistem hidrotermal, air merupakan pelarut yang sangat penting dan digunakan sebagai mineralizer pada proses hidrotermal.

Pada dekade terakhir, teknik hidrotermal telah menawarkan beberapa keuntungan baru seperti presipitasi homogen menggunakan kelat logam baru dibawah kondisi hidrotermal, dekomposisi yang berbahaya dan tahan api dari bahan kimia, monomerisasi polimer tinggi seperti *polyethylene terephthalate*, dan sejumlah masalah teknik lingkungan lainnya Metode

hidrotermal untuk pertumbuhan kristal memiliki beberapa keunggulan. Kelebihan ini sangat penting untuk efisiensi dalam teknologi pengembangan kristal tunggal yang lebih besar dan lebih murni. Selain itu, teknik ini sedang digunakan dalam skala besar untuk mempersiapkan bahan piezoelektrik, magnetik, optik, keramik dan sejumlah bahan lainnya baik sebagai kristal tunggal ataupun bahan polikristalin (Byrappa, 2001).

## 2.6 Pengaruh Penggunaan *Template* Organik

Mekanisme pembentukan zeolit sangat kompleks karena melibatkan reaksi kimia, kesetimbangan, dan variasi larutan yang terjadi melalui campuran heterogen selama proses pro-kristalisasi. Mengacu pada bahan baku yang akan digunakan, perbedaan bahan dasar dalam sintesis zeolit akan menghasilkan struktur yang berbeda pula (Lobachev, 1973). Setiap perubahan rasio komposisi kimia zat penyusun zeolit sintesis akan berpengaruh terhadap hasil akhir dari proses sintesis zeolit. Besarnya rasio atau perbandingan zat penyusun ini akan berpengaruh terhadap komposisi kerangka zeolit yang dihasilkan, kecepatan kristalisasi, konsentrasi ion  $\text{OH}^-$ , dan lain-lain.

Secara umum ZSM-5 disintesis dalam sistem hidrotermal mengandung sumber alumina, sumber silika dan molekul organik (*template*). Ion tetrapropilamonium ( $\text{TPA}^+$ ) adalah molekul organik pertama, yang dilaporkan mampu merangsang pembentukan ZSM-5. Penelitian yang dilakukan kemudian menunjukkan bahwa penggunaan TPA memungkinkan sintesis ZSM-5 dengan rasio Si/Al mulai dari 25 hingga tak terbatas. Derouane dan Gabelica juga telah meneliti proses pembentukan fasa ZSM-5 dan peran kation logam alkali, dengan menggunakan *template* tetrabutylamonium bromida (Gabelica dkk., 1983). Tabel 2.1 menunjukkan bahwa *template* TPAOH memiliki kristalinitas tertinggi dibandingkan *template* lainnya. Ditemukan bahwa ukuran kristal rata-rata meningkat dengan urutan  $\text{TMAOH} < \text{TEAOH} < \text{TBAOH} < \text{TPAOH}$ . Dengan meningkatkan rasio mol

*template*/silika, luas permukaan menurun dan ukuran kristal rata-rata mengalami peningkatan.

Tabel 2.1 Pengaruh jenis *template* pada kristalinitas, luas permukaan dan ukuran kristal rata-rata sampel yang disintesis.

<b>Tipe <i>Template</i></b>	<b>Kristalinitas ZSM-5 (%)</b>	<b>Luas Permukaan (m<sup>2</sup>/g)</b>	<b>Ukuran Kristal Rata- rata (nm)</b>	<b>Fasa yang Terbentuk</b>
TMAOH	46,6	285	159,9	ZSM-5
TEAOH	74,7	292	76,3	ZSM-5
TBAOH	77,1	321,2	87,2	ZSM-5
TPAOH	97,3	358,21	55,8	ZSM-5 dan Analsim
TPABr	96,47	-	-	ZSM-5

(Fouad dkk., 2006; Rustam, 2013)

Pada tahun 2013, Rustam berhasil mensintesis ZSM-5 dengan menggunakan *template* organik TPAOH dan TPABr. Hasilnya menyebutkan bahwa penggunaan *template* TPAOH selain menghasilkan fasa ZSM-5 juga membentuk fasa analsim, sedangkan pada penggunaan *template* TPABr fasa analsim tidak terbentuk pada waktu kristalisasi 12 jam. Tabel 2.1 menunjukkan bahwa kristalinitas tertinggi dihasilkan pada sintesis dengan menggunakan *template* TPAOH. Hal ini dikarenakan oleh tingginya konsentrasi ion hidroksil (OH<sup>-</sup>) pada *template* TPAOH. Ukuran partikel sebagai fungsi dari waktu kristalisasi meningkat lebih tajam pada sampel TPABr daripada sampel TPAOH. Disebutkan juga bahwa konsentrasi ion hidroksil (OH<sup>-</sup>) yang tinggi pada *template* TPAOH mempercepat kelarutan kaolin sehingga

menyebabkan transformasi dari kaolin ke fasa amorf dan fasa kristalin lebih cepat dibandingkan *template* TPABr.

Ketajaman pertumbuhan ZSM-5 ini juga dilaporkan oleh Karimi dkk., (2012) yang menyebutkan parameter waktu kristalisasi memiliki efek yang kuat pada kristalinitas dan ukuran partikel dengan menggunakan *template* TPAOH dan TPABr. Pada waktu kristalisasi 12 jam dengan *template* TPAOH membentuk kristal ZSM-5 dengan permukaan yang sangat halus dibandingkan *template* TPABr.

Posisi atom kerangka sesuai dengan lingkungan tetrahedral oksigen di sekitar silikon. Molekul *template*, tetrapropilamonium ( $\text{TPA}^+$ ) fluorida, bromida atau hidroksida diperlukan untuk pertumbuhan dan stabilisasi dari kristal ZSM-5 dan keberadaannya dalam kristal yang disintesis, tidak selalu diketahui (Koningsveld dkk., 1987). Penggunaan *template* dalam sintesis ZSM-5 lebih disarankan karena menghasilkan diameter pori, luas permukaan dan kemurnian produk yang lebih tinggi dibandingkan sintesis tanpa *template* (Narayanan dkk., 1998). Agen organik maupun anorganik dapat digunakan sebagai pengarah struktur atau *template* zeolit. Menurut Kim dkk., (2003) *template* ini akan mengarahkan kondensasi dari aluminosilikat menjadi kerangka yang spesifik. Fungsi dari *template* organik adalah mengisi saluran internal tiga dimensi dari zeolit yang bisa mempertahankan struktur ZSM-5 selama kristalisasi dan mencegah perubahan fasa setelah kristalisasi. Setelah kristalisasi tercapai molekul pengarah struktur akan terperangkap dalam rongga, saluran atau lapisan struktur yang terbentuk (Vansant 1990; Zones 1994; Ishizaki, 1998; Li dkk., 1998).

Suseno (2007) berhasil melakukan penelitian dengan metode penambahan molekul pengarah struktur menggunakan TMA, TBA dan CTMA sehingga dapat menghasilkan zeolit baru dengan kekristalan tinggi dan ukuran pori yang bertambah hingga 70% dari ukuran pori semula serta mampu berfungsi sebagai padatan pendukung imobilisasi.

Penelitian lainnya menggunakan molekul organik n-CTMABr sebagai ammonium kuartener yang berfungsi sebagai *template*. Surfaktan n-CTMABr yang termasuk surfaktan kationik akan mengarahkan pembentukan pori. *Template* berfungsi seperti agen yang mengarahkan struktur kristal zeolit. *Template* disini berfungsi seperti kation untuk menetralkan kerangka yang anionik ( $[\text{SiO}_4]^{4-}$  atau  $[\text{AlO}_4]^{5-}$ ) (Mazak, 2006). Surfaktan kation CTMA<sup>+</sup> dalam campuran akan mempercepat reaksi dengan kerangka anionik yaitu ion silikat dalam proses perakitan struktur untuk membentuk suatu embrio zeolit.

## 2.7 Karakterisasi ZSM-5

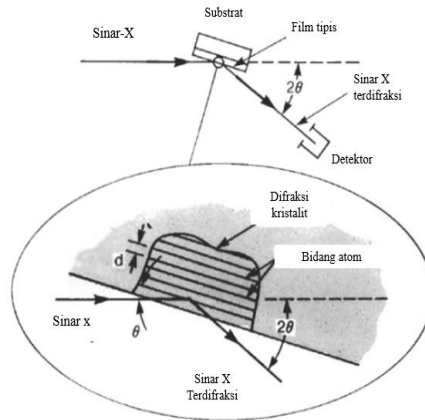
### 2.7.1 Difraksi Sinar-X

Teknik difraksi sinar-X merupakan salah satu teknik karakterisasi material yang menggunakan radiasi sinar-X yang ditangkap oleh detektor khusus. Detektor akan menangkap perbedaan besarnya intensitas dan sudut pantulan sinar-X yang dipancarkan oleh spesimen yang akan diterjemahkan dalam bentuk kurva. Sinar-X yang digunakan memancarkan pita-pita radiasi  $K_1$  dan  $K_2$ . Radiasi yang digunakan biasanya radiasi Cu  $K_1$  dengan panjang gelombang 1,54 Å. Berkas sinar radiasi Cu  $K_1$  ini didapatkan dengan menembakkan elektron ke Cu, sehingga dikeluarkan radiasi. Sinar-X yang diserap dan dipancarkan kembali oleh spesimen mengikuti hukum Bragg:

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad (2.1)$$

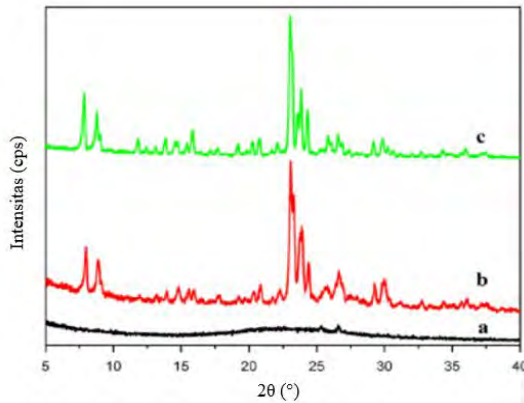
Dimana  $\lambda$  adalah panjang gelombang,  $n$  adalah jumlah gelombang sefasa,  $d$  merupakan jarak bidang atom pada fasa kristalin, dan  $\theta$  adalah sudut gelombang yang datang dan didifraksikan. Data yang didapatkan adalah intensitas dan besarnya sudut interferensi sinar-X. Intensitas yang tinggi artinya material tersebut memiliki kecenderungan orientasi pada arah tersebut. Besar atau kecilnya *background* dari kurva tersebut artinya material tersebut memiliki struktur amorf atau kristalin (Brundle

dkk., 1992). Gambar 2.7 menunjukkan skema kerja alat XRD yang mengenai permukaan spesimen.



Gambar 2.7 Ilustrasi difraksi sinar-X pada permukaan spesimen (Brundle dkk., 1992).

Gambar 2.8 menunjukkan pola XRD dari ZSM-5. Pada pola XRD, kristal padatan memantulkan sinar-X yang dikirimkan dari sumber dan diterima oleh detektor. Pola XRD yang diperoleh dari difraktometer yang secara kasat mata pertama dapat dilihat adalah fasa kristalin dan atau fasa amorf. Keberadaan fasa kristal dapat dilihat dengan adanya puncak-puncak difraksi, sedangkan material amorf memberikan pola berbentuk punuk difraksi atau intensitas latar yang tidak teratur (Pan dkk., 2014).



Gambar 2.8 Pola XRD dari sampel ZSM-5 (a) metakaolin (amorf) (b) sampel ZSM-5 tanpa template (c) sampel TPA-ZSM-5 yang sudah dikalsinasi (Pan dkk., 2014).

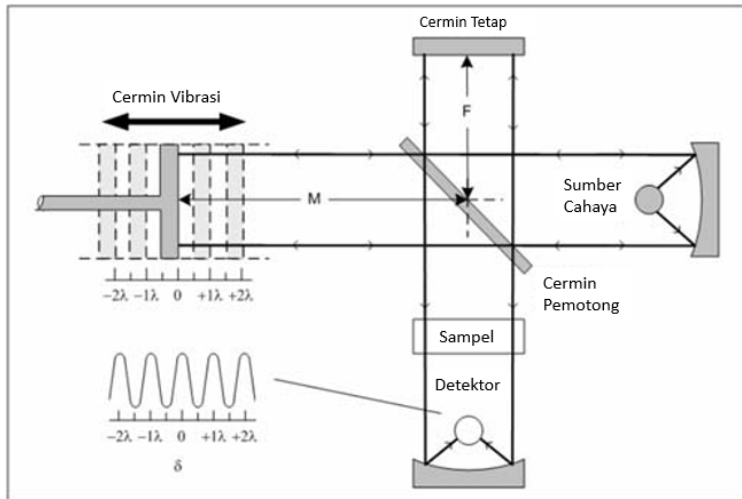
### 2.7.2 Spektroskopi *Fourier Transform Infrared* (FTIR)

Spektroskopi *Fourier Transform Infrared* (FTIR) merupakan pengukuran dengan teknik pengumpulan spektra inframerah dan menghitung intensitas terhadap panjang gelombang atau bilangan gelombang ( $\text{cm}^{-1}$ ). Analisis dengan metode ini didasarkan pada fakta bahwa molekul memiliki frekuensi khusus yang dihubungkan dengan vibrasi internal dari atom gugus fungsi. Pengukuran spektroskopi FTIR standar berlangsung pada  $7000\text{--}400\text{ cm}^{-1}$  tetapi dapat pula mencapai  $50\text{ cm}^{-1}$ , dengan menggunakan tambahan sumber sinar, optik dan detektor. Spektroskopi inframerah mendeteksi vibrasi spesifik dari suatu gugus fungsi dalam suatu sampel. Ketika sinar inframerah berinteraksi dengan materi, ikatan kimia akan mengalami vibrasi, *stretching*, atau *bending*. Sebagai hasilnya, gugus fungsi akan mengadsorpsi sinar inframerah dalam rentang panjang gelombang yang spesifik untuk setiap gugus fungsi.

Cara kerja alat ini adalah sinar inframerah dengan frekuensi bervariasi dari sumber sinar dilewatkan interferometer. Setelah

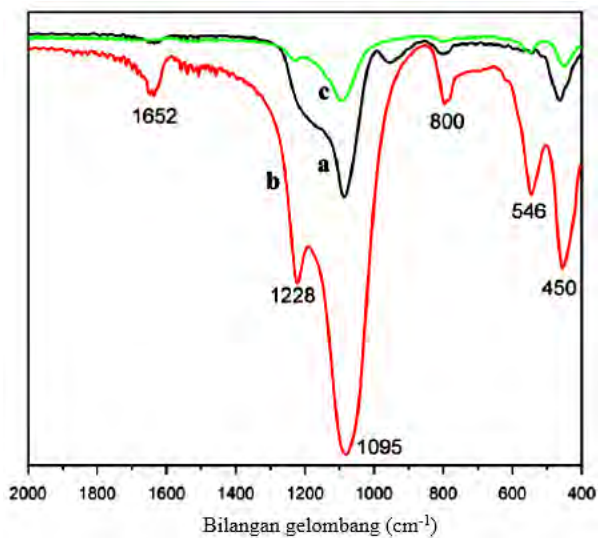


melewati sampel, sinyal yang terukur berupa interferogram. Sinyal yang dihasilkan ini diolah menggunakan metode matematika *Fourier Transform*, sehingga dihasilkan spektrum yang sama dengan spektrum yang dihasilkan dari spektroskopi inframerah konvensional (Sibilia, 1996). Gambar 2.9 menunjukkan skema kerja alat spektroskopi FTIR.



Gambar 2.9 Skema alat spektroskopi FTIR (Sibilia, 1996).

Gambar 2.10 menunjukkan spektra inframerah dari sampel ZSM-5. Pada struktur metakaolin, *shoulder* sekitar  $952\text{ cm}^{-1}$  ini disebabkan oleh gugus silanol pada permukaan prekursor. Ketika dilakukan proses hidrotermal, pita di  $952\text{ cm}^{-1}$  menghilang dan pita baru di  $546\text{ cm}^{-1}$  yang dimiliki oleh struktur pentasil cincin lima muncul.



Gambar 2.10 Spektra inframerah dari sampel ZSM-5 (a) metakaolin (amorf) (b) sampel ZSM-5 tanpa template (c) sampel TPA-ZSM-5 yang sudah dikalsinasi (Pan dkk., 2014).

## **BAB III METODOLOGI**

Penelitian ini bertempat di Laboratorium Kimia Material dan Energi Jurusan Kimia FMIPA Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya dengan menggunakan Kaolin Bangka dan abu sekam padi sebagai sumber silika dan alumina untuk sintesis ZSM-5 dengan perbedaan penambahan *template* organik serta variasi waktu kristalisasi. Padatan hasil sintesis dikarakterisasi dengan *X-ray Diffraction* (XRD) dan spektroskopi *Fourier Transform Infrared* (FTIR).

### **3.1 Alat dan Bahan**

#### **3.1.1 Alat dan Instrumentasi**

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini diantaranya peralatan gelas dan plastik, neraca analitik, pengaduk magnetik, kertas saring, kertas pH universal, oven, *centrifuge*, tabung *centrifuge*, kurs porselen, dan autoklaf *stainless steel* untuk proses hidrotermal. Instrumen yang digunakan untuk analisa fasa kristal dan kristalinitas padatan adalah XRDJOEL JDX-3530 *X-ray Diffraction* (XRD) dan spektroskopi *Fourier Transform Infrared* (FTIR) Shimadzu *Instrument Spectrum One* 8400S untuk mengetahui gugus fungsi pada sampel hasil sintesis.

#### **3.1.2 Bahan**

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini diantaranya adalah kaolin Bangka (47%  $\text{SiO}_2$  dan 22%  $\text{Al}_2\text{O}_3$  wt% menggunakan XRF), natrium hidroksida ( $\text{NaOH} \geq 99$  wt%; Merck), abu sekam padi (94%  $\text{SiO}_2$ ), tetrapropilamonium hidroksida (TPAOH), tetrapropilamonium bromida (TPABr), dan air demineralisasi.

## 3.2 Prosedur Kerja

### 3.2.1 Preparasi ZSM-5

ZSM-5 disintesis menggunakan metode hidrotermal dengan perbandingan mol yang digunakan adalah  $10\text{Na}_2\text{O} : 100\text{SiO}_2 : 2\text{Al}_2\text{O}_3 : 2000\text{H}_2\text{O} : 20\text{TPAOH}$ . Selain itu, ZSM-5 juga disintesis dengan *template* organik lain yaitu TPABr.

### 3.2.2 Sintesis ZSM-5 dengan *Template* Organik TPABr

Pada penelitian ini sintesis ZSM-5 dilakukan dengan menggunakan bahan-bahan diantaranya kaolin Bangka sebagai sumber silikat ( $\text{SiO}_2$ ) dan aluminat ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) serta penambahan abu sekam padi sebagai penyumbang kekurangan silikat. NaOH digunakan sebagai sumber basa dan air demineralisasi digunakan sebagai sumber  $\text{H}_2\text{O}$  serta TPABr sebagai *template* organik pengarah struktur. Dikarenakan keterbatasan bahan yang tersedia, rasio mol yang digunakan dibagi sebesar 400. Preparasi dilakukan dengan melarutkan 2 gram NaOH dalam 20 gram air demineralisasi dan menambahkan 3,71 gram kaolin ke dalam larutan NaOH tersebut sambil diaduk menggunakan pengaduk magnetik. Kemudian 14,82 gram abu sekam padi ditambahkan perlahan dilanjutkan dengan penambahan 70 gram air demineralisasi. Penambahan dilakukan sambil terus dilakukan pengadukan. Pengadukan dilakukan hingga homogen pada suhu ruang selama 2 jam. Lalu sebanyak 13,3 gram *template* organik TPABr ditambahkan perlahan ke dalam campuran sambil terus dilakukan pengadukan hingga homogen selama 6 jam dengan kecepatan 400 rpm. Kemudian pemeraman dilakukan selama 12 jam pada suhu ruang. Selanjutnya hasil pemeraman dipindahkan ke dalam reaktor autoklaf *stainless steel* setelah diperam dan dipanaskan untuk dilakukan proses hidrotermal pada suhu  $175^\circ\text{C}$  dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 9, 12, 24, dan 48 jam. Setelah proses kristalisasi hidrotermal, padatan dan cairan dipisahkan dengan *centrifuge* dan dicuci dengan air demineralisasi sampai  $\text{pH} = 7$  (netral). Padatan yang diperoleh disaring dan dikeringkan pada suhu  $110^\circ\text{C}$  selama 12 jam.

Setelah pemisahan, pencucian, dan pengeringan, padatan didinginkan kemudian ditimbang untuk selanjutnya dikarakterisasi dengan instrumen XRD dan spektroskopi FTIR.

### 3.2.3 Sintesis ZSM-5 dengan *Template* Organik TPAOH

Sama halnya dengan TPABr, dikarenakan keterbatasan bahan yang tersedia, rasio mol yang digunakan dibagi sebesar 250. Sintesis ZSM-5 untuk *template* yang berbeda diawali dengan melarutkan 3,2 gram NaOH dalam 20,2 gram air demineralisasi dan menambahkan 3,71 gram kaolin ke dalam larutan NaOH tersebut sambil diaduk menggunakan pengaduk magnetik. Kemudian 23,71 gram abu sekam padi ditambahkan perlahan dilanjutkan dengan penambahan 85,2 gram air demineralisasi. Penambahan dilakukan sambil terus dilakukan pengadukan. Pengadukan dilakukan hingga homogen pada suhu ruang selama 2 jam. Lalu sebanyak 16,3 gram *template* organik TPAOH ditambahkan perlahan ke dalam campuran sambil terus dilakukan pengadukan hingga homogen selama 6 jam dengan kecepatan 400 rpm. Kemudian pemeraman dilakukan selama 12 jam pada suhu ruang. Selanjutnya hasil pemeraman dipindahkan ke dalam reaktor autoklaf *stainless steel* setelah diperam dan dipanaskan untuk dilakukan proses hidrotermal pada suhu 175 °C dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 9, 12, 24, dan 48 jam. Setelah proses kristalisasi hidrotermal, padatan dan cairan dipisahkan dengan *centrifuge* dan dicuci dengan air demineralisasi sampai pH = 7 (netral). Padatan yang diperoleh disaring dan dikeringkan pada suhu 110 °C selama 12 jam.

Setelah pemisahan, pencucian, dan pengeringan, padatan didinginkan kemudian ditimbang untuk selanjutnya dikarakterisasi dengan instrumen XRD dan spektroskopi FTIR.

## 3.3 Karakterisasi Padatan

### 3.3.1 Difraksi Sinar-X (XRD)

Sampel padatan yang dikarakterisasi dengan difraksi sinar-X adalah ZSM-5 dengan variasi waktu hidrotermal. Karakterisasi

dengan difraktometer sinar-X ini digunakan untuk mengetahui fasa kristal dan kristalinitasnya. Struktur padatan dikarakterisasi dengan cara sampel sebesar  $\pm 1$  gram ditumbuk hingga halus dan diletakkan pada *sample holder* dengan permukaan yang rata. Kemudian dikarakterisasi pada  $2\theta$  sebesar  $5-50^\circ$  dengan sumber radiasi Cu K $\alpha$  ( $\lambda=1,54\text{\AA}$ ).

### 3.3.2 Spektroskopi Inframerah (FTIR)

Spektroskopi inframerah digunakan untuk mengarakterisasi padatan hasil sintesis sehingga dapat diketahui ikatan dalam sampel yang diinginkan, komposisi campuran, dan dapat membantu memberikan informasi dalam memperkirakan struktur molekul karena gugus fungsi telah diketahui. Sampel yang diuji adalah ZSM-5 dengan variasi waktu hidrotermal dan dianalisis dengan spektroskopi FTIR pada bilangan gelombang  $4000-400\text{ cm}^{-1}$ .

## BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN

### 4.1 Sintesis ZSM-5

Pada penelitian ini telah dilakukan sintesis ZSM-5 dari kaolin Bangka dan abu sekam padi menggunakan *template* organik TPAOH dan TPABr. Bahan-bahan yang digunakan yaitu kaolin Bangka sebagai sumber silikat ( $\text{SiO}_2$ ) dengan kandungan sebesar 47% dan kandungan aluminat ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) sebesar 22%, abu sekam padi sebagai penyumbang kekurangan silikat dengan kandungan 94%, NaOH digunakan sebagai sumber basa (ion  $\text{Na}^+$ ), air demineralisasi digunakan sebagai sumber  $\text{H}_2\text{O}$  serta TPAOH dan TPABr sebagai *template* organik pengarah struktur.

Sintesis diawali dengan menambahkan kaolin Bangka ke dalam larutan NaOH dengan diaduk menggunakan pengaduk magnetik. Padatan NaOH sebelumnya dilarutkan dengan setengah bagian dari air demineralisasi yang telah ditimbang terlebih dahulu. Kemudian abu sekam padi ditambahkan perlahan dilanjutkan dengan penambahan setengah dari sisa air demineralisasi. Setelah NaOH, kaolin, dan abu sekam padi tercampur merata, campuran kemudian diaduk hingga homogen pada suhu ruang selama 2 jam. Lalu *template* ditambahkan perlahan ke dalam campuran sambil terus dilakukan pengadukan hingga homogen selama 6 jam dengan kecepatan 400 rpm. Pengadukan selama 8 jam tersebut bertujuan untuk membuat homogen campuran agar komposisi merata seluruhnya dan mencegah penggumpalan. Setelah itu pemeraman (*aging*) dilakukan selama 12 jam pada suhu ruang untuk pembentukan inti kristal dan agar terjadi penataan ulang struktural yang akan mempengaruhi fasa padat dan cair.

Hasil pemeraman kemudian dipindahkan ke reaktor autoklaf *stainless steel* setelah diperam dan dipanaskan untuk dilakukan proses hidrotermal pada suhu 175 °C dengan variasi waktu kristalisasi 3, 6, 9, 12, 24, dan 48 jam. Proses hidrotermal ini bertujuan untuk pembentukan kristal (proses kristalisasi) dari

ZSM-5. Hidrotermal mengacu pada reaksi heterogen dengan adanya pelarut air atau mineralizer dalam kondisi tekanan tinggi dan suhu untuk melarutkan dan mengkristalkan kembali bahan yang relatif tidak larut dalam kondisi biasa (Byrappa, 2001). Pada tahap pembentukan kristal, gel amorf akan mengalami penataan ulang pada strukturnya disebabkan pemanasan yang dapat membentuk embrio inti kristal, di fasa ini terjadi kesetimbangan antara embrio inti kristal, gel amorf sisa, dan larutan lewat jenuh. Proses tersebut berada pada keadaan metastabil. Jika gel amorf sisa larut kembali, maka akan terjadi pertumbuhan kristal dari embrio inti tersebut sampai gel amorf sisa tersebut habis dan terbentuk kristal dalam keadaan stabil. Tahap ini merupakan tahap pertumbuhan kristal (Hadi, 1986).

Setelah proses hidrotermal selesai, padatan dicuci dengan menggunakan air demineralisasi sampai pH = 7 (netral). Ketika selesai proses hidrotermal pH awal diukur menggunakan kertas pH universal. Pada campuran yang menggunakan TPAOH, pH awal yang terukur sebesar 14 sedangkan pH campuran yang menggunakan TPABr sebesar 13. Perbedaan nilai pH pada campuran awal ini dikarenakan fakta bahwa campuran yang mengandung TPAOH lebih basa daripada TPABr, sementara campuran gel awal yang mengandung TPAOH memiliki nilai pH yang lebih tinggi karena didukung ion  $\text{OH}^-$  dari NaOH. Apabila sudah netral padatan yang diperoleh dikeringkan pada suhu 110 °C selama 24 jam untuk menghilangkan kandungan air setelah proses pencucian yang telah dilakukan. Lalu produk hasil sintesis dikarakterisasi dengan menggunakan difraksi sinar-X (XRD) untuk mengetahui kristalinitas padatan dan spektroskopi inframerah (FTIR) untuk mengetahui vibrasi gugus fungsi pada padatan.

## **4.2 Karakterisasi ZSM-5**

### **4.2.1 Difraksi Sinar-X (XRD)**

Teknik difraksi sinar-X (XRD) dilakukan untuk karakterisasi struktur dan fasa kristalin serta dapat digunakan



untuk menentukan kristalinitas dari padatan/material hasil sintesis yang telah dilakukan. Gambar 4.1 menunjukkan pola XRD dari sampel padatan yang disintesis dengan variasi waktu kristalisasi 3, 6, 9, 12, 24, dan 48 jam menggunakan TPABr, sedangkan Gambar 4.1 (a) menunjukkan pola XRD dari kaolin yang diambil dari *Collection of Simulated XRD Powder Patterns for Zeolites* (Treacy dan Higgins, 2001) untuk mengetahui zeolit yang terbentuk. Pola XRD dari kaolin Bangka menunjukkan puncak-puncak pada  $2\theta = 12,3; 24,8; \text{ dan } 38,3^\circ$  seperti yang dilaporkan oleh Kahraman (2005). Pada Gambar 4.1 (a) menunjukkan bahwa terdapat kesamaan pada beberapa puncak dengan intensitas rendah pada waktu kristalisasi 3, 6, 9, dan 12 jam seperti Gambar 4.1 (b), (c), (d), dan (e) dimana terdapat puncak pada  $2\theta = 12,3 \text{ dan } 24,8^\circ$  yang menunjukkan keberadaan kaolin Bangka. Intensitas yang lemah ini mengindikasikan bahwa kaolin sudah mulai terlarut, terlebih lagi hingga waktu hidrotermal 9 jam tidak ada puncak yang diidentifikasi sebagai kristal ZSM-5. Gambar 4.1 (e), (f), dan (g) merupakan pola XRD dari sampel dengan waktu kristalisasi 12, 24, dan 48 jam. Puncak difraksi yang muncul setelah 48 jam sesuai dengan puncak karakteristik ZSM-5. Puncak-puncak karakteristik tersebut berada pada sekitar  $2\theta = 7,97; 8,87; 23,1; \text{ dan } 24,4^\circ$  yang merupakan pola ZSM-5 dengan tipe struktur MFI dapat dilihat pada gambar tersebut (Treacy dan Higgins, 2001). Selanjutnya pada waktu kristalisasi 6 hingga 48 jam ditunjukkan oleh Gambar 4.1 (c), (d), (e), (f), dan (g), nampak bahwa terdapat fasa-fasa karakteristik lain yaitu struktur analsim. Fasa lain ini muncul pada  $2\theta = 16^\circ \text{ dan } 26^\circ$  (Treacy dan Higgins, 2001).

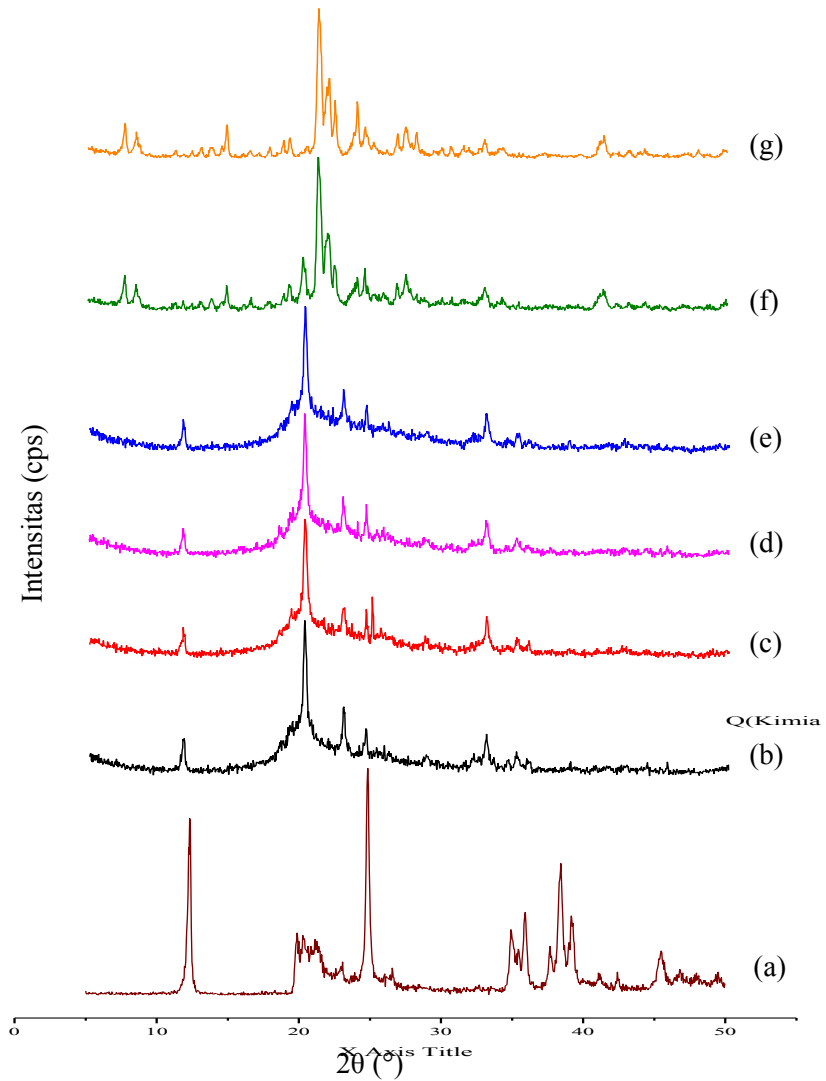
Pola XRD hasil sampel dari campuran reaksi yang mengandung TPAOH (Gambar 4.2) menunjukkan hasil yang hampir sama dengan Gambar 4.1. Sementara itu, pada waktu hidrotermal 24 jam belum terbentuk sepenuhnya struktur ZSM-5 walaupun sudah mulai terbentuk pada puncak  $2\theta = 23,14^\circ$ . Pola XRD pada penggunaan *template* organik TPABr, puncak dengan intensitas rendah sekitar  $2\theta = 26,1^\circ$  juga menandakan adanya fasa

analsim pada waktu kristalisasi 9 hingga 48 jam ditunjukkan oleh Gambar 4.2 (d), (e), (f), dan (g). Pola XRD dengan waktu hidrotermal 48 jam menunjukkan intensitas ZSM-5 dan analsim yang tinggi. Fasa ZSM-5 sudah terbentuk sepenuhnya pada waktu kristalisasi 48 jam dengan ditunjukkan puncak  $2\theta = 7,93; 8,81; 23,07; \text{ dan } 23,23^\circ$ .

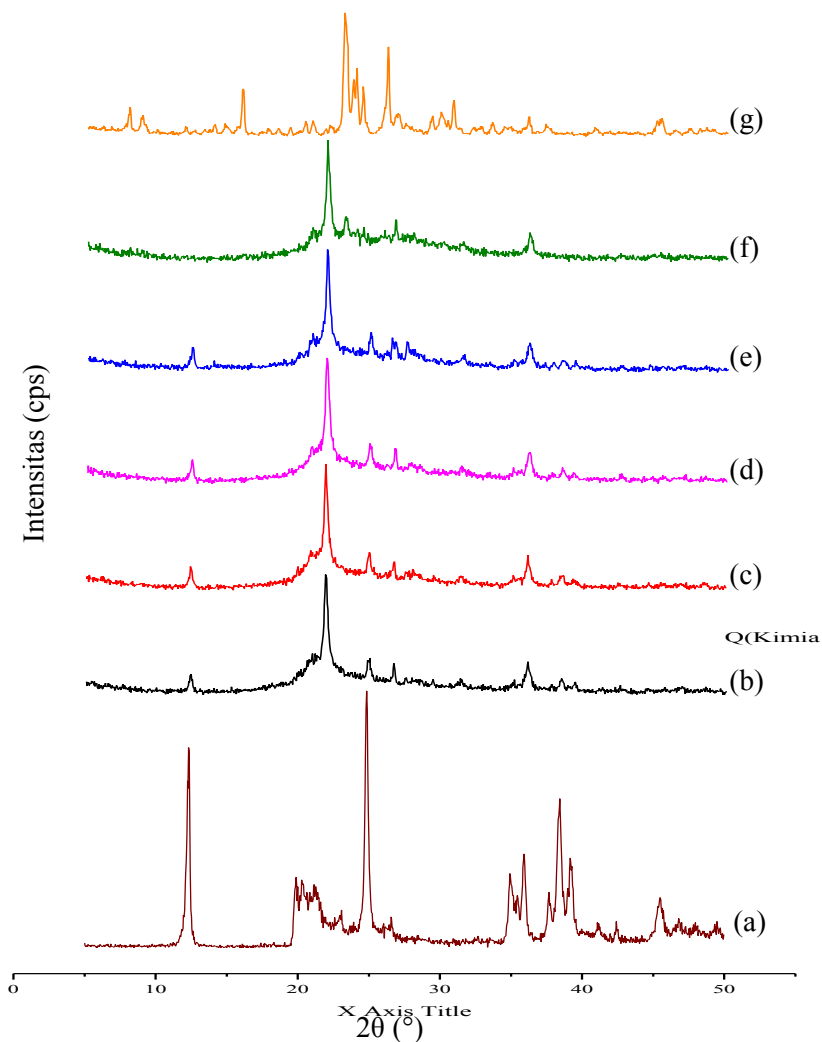
Ketika periode induksi selesai, jelas bahwa karakteristik difraksi sinar-X sampel dengan puncak pada  $2\theta = 7-9^\circ, 22-25^\circ$ , yang merupakan struktur khas dari ZSM-5. Hal ini mengindikasikan bahwa ZSM-5 sudah terbentuk pada waktu kristalisasi 24 dan 48 jam untuk sampel yang menggunakan *template* organik TPABr, sedangkan pada sampel yang menggunakan *template* organik TPAOH, ZSM-5 belum sepenuhnya terbentuk pada waktu kristalisasi 24 jam.

Tabel 4.1 Fasa kristalin pada waktu kristalisasi dan *template* yang berbeda.

No.	Waktu Kristalisasi (jam)	Fasa	
		TPABr	TPAOH
1	3	Kaolin dan Kristobalit	Kaolin dan Kristobalit
2	6	Kaolin dan Kristobalit	Kaolin dan Kristobalit
3	9	Kaolin dan Kristobalit	Kaolin dan Kristobalit
4	12	Kaolin dan Kristobalit	Kaolin dan Kristobalit
5	24	ZSM-5, Analsim, Kristobalit	ZSM-5, Analsim, Kristobalit
6	48	ZSM-5 dan Analsim	ZSM-5 dan Analsim



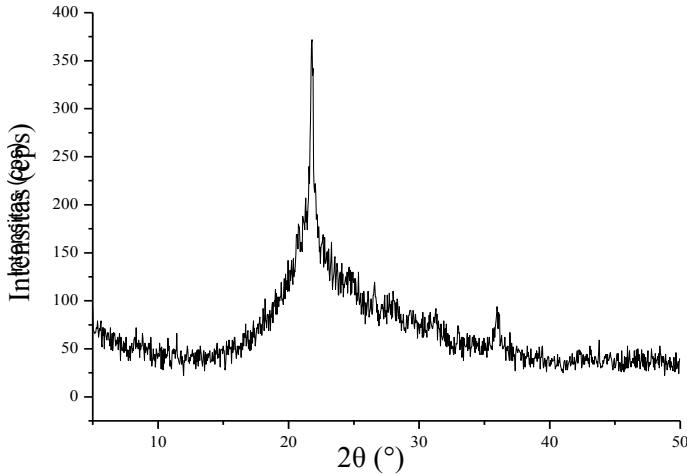
Gambar 4. 1 Pola difraktogram sinar-X sampel (a) kaolin, sampel dengan *template* organik TPABr waktu kristalisasi (b) 3 jam, (c) 6 jam, (d) 9 jam, (e) 12 jam, (f) 24 jam, dan (g) 48 jam.



Gambar 4.2 Pola difraktogram sinar-X sampel (a) kaolin, sampel dengan template organik TPAOH waktu kristalisasi (b) 3 jam, (c) 6 jam, (d) 9 jam, (e) 12 jam, (f) 24 jam, dan (g) 48 jam.

Tabel 4.1 menunjukkan fasa kristalin yang terbentuk pada waktu kristalisasi dan *template* yang berbeda. Pada Gambar 4.1 dan 4.2 bahwa selain analisis diketahui juga terdapat puncak dengan intensitas yang cukup tinggi yaitu pada waktu kristalisasi 3 hingga 12 jam di  $2\theta = 21,85^\circ$  yang diketahui sebagai kristobalit (Atta dkk., 2012). Pada penelitian sebelumnya, analisa pola XRD menunjukkan bahwa abu sekam padi menunjukkan fasa kristal dalam bentuk kristobalit. Keberadaan kristobalit ditunjukkan oleh puncak difraksi pada  $2\theta = 21,9; 28,5; 31,5; \text{ dan } 36,3^\circ$  (Kordatos dkk., 2008). Berdasarkan puncak tersebut, dapat disimpulkan bahwa puncak yang tinggi terdiri dari silika kristal dalam bentuk kristobalit yang berasal dari abu sekam padi yang telah dikalsinasi sebelumnya. Semakin lama waktu hidrotermal seharusnya fasa kristobalitnya semakin hilang, namun pada sampel dengan *template* organik TPAOH di waktu kristalisasi 24 jam masih terdapat kristobalit dengan intensitas yang masih cukup tinggi walaupun ZSM-5 sudah terbentuk sepenuhnya di waktu kristalisasi 48 jam.

Fasa kristobalit pada sampel hasil sintesis yang berasal dari abu sekam padi diperkuat dengan hasil XRD dari abu sekam padi pada Gambar 4.3. Pola XRD menunjukkan adanya puncak dengan intensitas yang tinggi pada  $2\theta = 21,85^\circ$ . Bahan dasar abu sekam padi yang digunakan sulit untuk larut pada waktu kristalisasi yang singkat, namun akan larut sepenuhnya pada waktu kristalisasi 48 jam di kedua jenis *template*. Ketika fasa amorf larut, maka konsentrasi kristobalit akan meningkat seiring dengan proses hidrotermal.



Gambar 4.3 Pola XRD dari sampel abu sekam padi

Selain terdapat fasa analsim dan kristobalit, pada sampel hasil sintesis ditunjukkan juga adanya fasa kuarsa di tiap waktu kristalisasi dengan puncak  $2\theta = 26,6^\circ$  (Treacy dan Higgins, 2001). Kedua *template* TPABr dan TPAOH mengindikasikan adanya fasa kuarsa dengan intensitas yang kecil. Fasa kuarsa ini tidak terbentuk selama proses hidrotermal akan tetapi bersumber dari abu sekam padi.

Pola XRD dari sampel dengan penggunaan *template* TPABr dengan waktu kristalisasi 24 dan 48 jam menunjukkan puncak-puncak yang tajam dengan intensitas tinggi sehingga dapat disimpulkan bahwa sampel tersebut memiliki fasa kristal ZSM-5. Pada penggunaan *template* TPAOH didapat puncak ZSM-5 dengan intensitas tinggi yaitu pada waktu kristalisasi 48 jam. Untuk mengetahui total kristalinitas dari ZSM-5 dan fasa lain yang terdapat pada sampel dapat dihitung dengan membandingkan puncak XRD pada  $2\theta = 22,5-25^\circ$  (Wang dkk., 2007). Selain itu untuk melihat tingkat kristalinitas dapat ditentukan dari intensitas yang didapatkan pada pola XRD. Hasil intensitas dari sampel untuk fasa ZSM-5 ditunjukkan pada Tabel 4.2 berikut:

Tabel 4.2 Intensitas ZSM-5 dari pola XRD sampel dengan waktu kristalisasi 3, 6, 9, 12, 24, dan 48 jam.

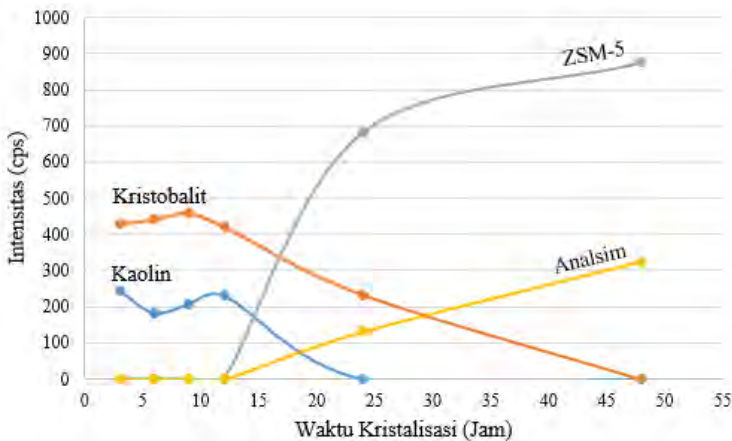
Waktu Kristalisasi	Intensitas Sampel pada (20 = 23,00-23,20°)	
	TPABr	TPAOH
3 jam	0	0
6 jam	0	0
9 jam	0	0
12 jam	0	0
24 jam	697	202
48 jam	912	900

Berdasarkan intensitas yang ditunjukkan Tabel 4.2 pada sampel dengan waktu kristalisasi 3, 6, 9, 12, 24, dan 48 jam menggunakan *template* TPABr dan TPAOH dapat disimpulkan bahwa kristalinitas tertinggi yaitu pada sampel dengan waktu kristalisasi 48 jam *template* TPABr. Oleh karena itu, jika dibandingkan tingkat kristalinitas dilihat dari intensitas sampel dengan penggunaan *template*, TPABr lebih kristalin dibandingkan TPAOH. Hal ini kemungkinan disebabkan oleh ion OH<sup>-</sup> berlebih yang berada pada sampel yang menggunakan *template* TPAOH menghambat proses hidrotermal karena pada waktu kristalisasi 24 jam ZSM-5 juga belum terbentuk sempurna berbeda dengan pembentukan ZSM-5 dengan *template* TPABr.

Waktu kristalisasi yang singkat belum menyebabkan terbentuknya ZSM-5 sehingga proses awal nukleasi yaitu pembentukan ZSM-5 belum dimulai. Oleh karena itu, dapat disimpulkan bahwa waktu kristalisasi berpengaruh dalam pembentukan ZSM-5. Tabel 4.2 menunjukkan bahwa pada waktu kristalisasi yang singkat belum terdapat kristalinitas dari ZSM-5, namun waktu kristalisasi yang semakin lama akan menyebabkan intensitas puncak yang semakin tinggi dan persentase kristalinitas yang semakin tinggi pula. Waktu kristalisasi pada pembentukan

zeolit dicapai dari fasa larutan menjadi fasa gel kemudian menjadi fasa padatan sampai membentuk ikatan Si-O-Al (Hamdan, 1992).

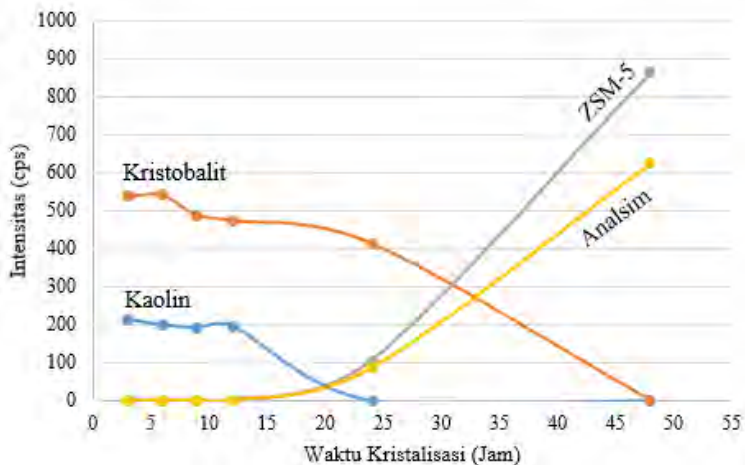
Gambar 4.4 menunjukkan semua fasa yang terkandung pada sampel hasil sintesis menggunakan *template* TPABr. Kelarutan dari bahan dasar utama yaitu kaolin Bangka menurun seiring dengan lamanya waktu kristalisasi yang mengindikasikan bahwa kaolin Bangka larut sepenuhnya ketika ZSM-5 sudah terbentuk sempurna. Fasa kristobalit juga menurun selama proses hidrotermal berlangsung walaupun pada awalnya sedikit meningkat. Sementara itu, fasa dari ZSM-5 meningkat tajam pada waktu kristalisasi 24 jam dan terus meningkat hingga waktu kristalisasi 48 jam serta analsim juga meningkat seiring dengan berlangsungnya proses hidrotermal. Berdasarkan grafik ini, maka dapat disimpulkan bahwa kristal ZSM-5 dan analsim mulai terbentuk pada waktu kristalisasi 24 jam.



Gambar 4.4 Grafik kelarutan bahan dasar sintesis ZSM-5 dan pembentukan fasa tiap waktu kristalisasi menggunakan *template* TPABr.



Gambar 4.5 menunjukkan semua fasa yang berada pada sampel hasil sintesis menggunakan *template* TPAOH. Kelarutan dari kaolin Bangka menurun seiring dengan lamanya waktu kristalisasi yang mengindikasikan bahwa kaolin Bangka larut sepenuhnya ketika ZSM-5 sudah terbentuk sempurna, sama halnya dengan kelarutan pada penggunaan *template* TPABr. Fasa kristobalit juga diindikasikan larut sepenuhnya pada waktu kristalisasi 48 jam. Hasil sintesis utama yaitu fasa dari ZSM-5 meningkat tajam pada waktu kristalisasi 24 jam dan terus meningkat hingga waktu kristalisasi 48 jam serta analsim juga meningkat tajam seiring dengan berlangsungnya proses hidrotermal. Berdasarkan grafik, dapat disimpulkan bahwa kristal ZSM-5 tumbuh dari waktu kristalisasi 24 ke 48 jam. Ketajaman peningkatan grafik menunjukkan analsim terbentuk dengan intensitas yang lebih tinggi dibandingkan dengan intensitas analsim pada penggunaan *template* TPABr.



Gambar 4.5 Grafik kelarutan bahan dasar sintesis ZSM-5 dan pembentukan fasa tiap waktu kristalisasi menggunakan *template* TPAOH.

#### 4.2.2 Spektroskopi *Fourier Transform Infrared* (FTIR)

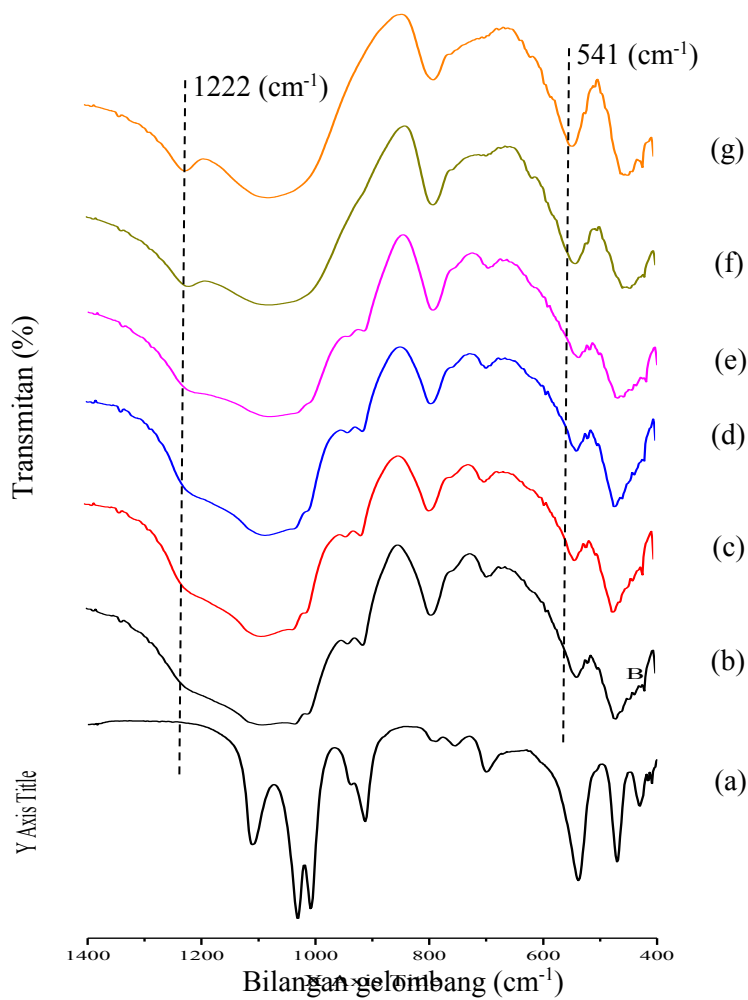
Teknik spektroskopi inframerah dilakukan menggunakan FTIR (Shimadzu 8400S) untuk melihat gugus fungsi dan macam-macam ikatan yang terdapat dalam senyawa dari padatan hasil sintesis. Gambar 4.6 menunjukkan spektra inframerah yang diamati pada bilangan gelombang  $1400\text{ cm}^{-1}$  sampai  $400\text{ cm}^{-1}$  dari sampel (a) kaolin, sampel dengan *template* organik TPABr waktu kristalisasi (b) 3 jam, (c) 6 jam, (d) 9 jam, (e) 12 jam, (f) 24 jam, dan (g) 48 jam. Spektra inframerah pada Gambar 4.6 (a) merupakan kaolin yang menunjukkan puncak pada bilangan gelombang 430, 470, 538, 700, 754, 788, 912, 1008, 1029, dan  $1110\text{ cm}^{-1}$ . Hasil ini didukung oleh laporan Chandrasekhar (1996) bahwa spektra inframerah kaolin muncul pada bilangan gelombang di daerah  $540\text{ cm}^{-1}$  yang menunjukkan vibrasi ikatan Al-O pada  $\text{Al}[\text{O}(\text{OH})]_6$ ; 789 dan  $914\text{ cm}^{-1}$  yang menunjukkan vibrasi ikatan (Al-O)-H pada  $\text{Al}[\text{O}(\text{OH})]_6$ .

Seperti pada Gambar 4.6 dan Gambar 4.7 spektra inframerah dengan waktu kristalisasi 3, 6, 9, dan 12 jam menunjukkan adanya puncak di daerah sekitar  $914\text{ cm}^{-1}$  yang menunjukkan vibrasi tekuk ikatan golongan Si-O-H dari kaolin (Saikia dkk., 2003). Pita ini tidak muncul pada waktu kristalisasi 24 dan 48 jam dikarenakan fasa kaolin sudah terlarut seluruhnya. Puncak adsorpsi pada bilangan gelombang 794 dan  $1091\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan vibrasi ulur dari ikatan Si-O-Si, sedangkan puncak di sekitar  $460\text{ cm}^{-1}$  menandakan vibrasi tekuk  $\text{TO}_4$ . Oleh karena itu, dapat disimpulkan bahwa pada waktu kristalisasi 3 sampai 12 jam kaolin masih ada di dalam sampel, yang juga didukung oleh data XRD sebelumnya.

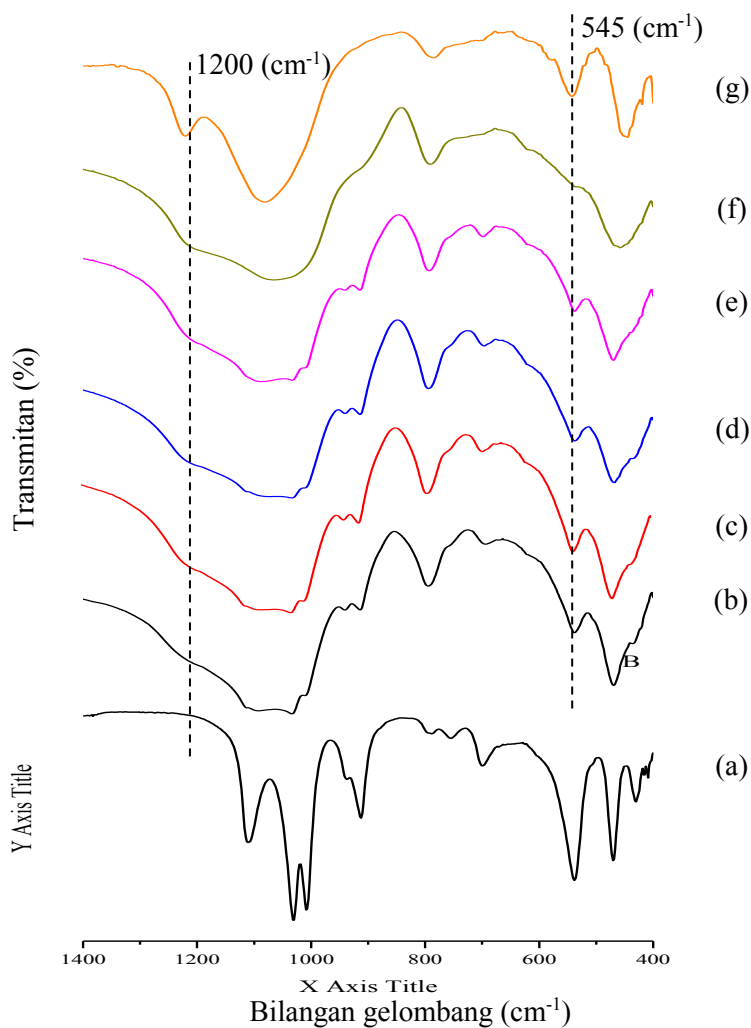
Spektra inframerah pada sampel dengan waktu kristalisasi 24 dan 48 jam (Gambar 4.6) menunjukkan puncak yang sama pada bilangan gelombang sekitar 545, 798, dan  $1222\text{ cm}^{-1}$ . Keberadaan ZSM-5 dari hasil sintesis diindikasikan dengan pita inframerah pada  $545\text{ cm}^{-1}$ , yang ditandai dengan cincin lima dari struktur zeolit pentasil (Kirschhock dkk., 1999). Selain itu, bukti lain dari terbentuknya ZSM-5 yaitu terdapat vibrasi ulur asimetri

eksternal ikatan Si-O-T pada puncak di sekitar  $1222\text{ cm}^{-1}$  dimana T adalah Si atau Al. Menurut Tanaka dkk., (2006) pada puncak di daerah  $455\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan vibrasi tekuk ikatan Si-O, puncak  $545\text{ cm}^{-1}$  ditandai dengan adanya ikatan eksternal dari tetrahedral dengan struktur kerangka, serta pada puncak  $795\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan vibrasi ulur simetri dari tetrahedral  $\text{SiO}_4$ . Kim dkk., (2003) juga menyebutkan bahwa pada pita serapan di sekitar  $546\text{ cm}^{-1}$  mengindikasikan pembentukan cincin rangkap lima dari tetrahedral  $\text{SiO}_4$  dan  $\text{AlO}_4$ . Pita serapan di sekitar  $1229\text{ cm}^{-1}$  menandakan adanya pembentukan kristal ZSM-5 dan menentukan adanya pori-pori dengan saluran tiga dimensi, tidak hanya itu pita-pita serapan di  $447$ ,  $546$ , dan  $798\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan struktur kristal lengkap dari ZSM-5 (Wang dkk., 2007). Pita serapan  $447\text{ cm}^{-1}$  disebabkan oleh getaran internal dari tetrahedra Si dan  $\text{AlO}_4$  yang muncul baik pada silika maupun ZSM-5. Pada penelitian lainnya juga disebutkan bahwa ZSM-5 memiliki bilangan gelombang yang sensitif pada daerah  $1225$  dan  $545\text{ cm}^{-1}$  (Shukla dan Pandya, 1989).

Spektra inframerah sampel dengan waktu kristalisasi 24 dan 48 jam menunjukkan puncak khas dari ZSM-5 pada bilangan gelombang  $545$  dan  $1222\text{ cm}^{-1}$ . Hal ini mengindikasikan bahwa ZSM-5 sudah terbentuk pada waktu kristalisasi 24 jam. Selain itu, puncak ini masih dapat diamati ketika waktu kristalisasi ditambah hingga 48 jam dan bahkan sudah terbentuk sempurna. Sementara itu, pada sampel yang menggunakan *template* TPAOH (Gambar 4.7), ZSM-5 terbentuk pada waktu kristalisasi 48 jam karena pada waktu kristalisasi 24 jam belum terdapat puncak karakteristik dari ZSM-5. Pada puncak di sekitar  $1200\text{ cm}^{-1}$  dengan waktu kristalisasi 3 hingga 12 jam masih berbentuk *shoulder* dan belum terbentuk puncak karakteristik dari ZSM-5 yang menggunakan *template* TPABr dan TPAOH.



Gambar 4. 6 Spektra inframerah sampel (a) kaolin, sampel dengan *template* organik TPABr waktu kristalisasi (b) 3 jam, (c) 6 jam, (d) 9 jam, (e) 12 jam, (f) 24 jam, dan (g) 48 jam.



Gambar 4.7 Spektra inframerah sampel (a) kaolin, sampel dengan *template* organik TPAOH waktu kristalisasi (b) 3 jam, (c) 6 jam, (d) 9 jam, (e) 12 jam, (f) 24 jam, dan (g) 48 jam.

Keberadaan puncak kaolin pada spektra inframerah didukung data dari pola XRD yang menunjukkan adanya puncak pada sampel dengan waktu kristalisasi 3 hingga 12 jam dan sudah larut pada waktu kristalisasi 24 dan 48 jam di kedua *template*. Tabel 4.3 menunjukkan puncak pada sampel dalam  $\text{cm}^{-1}$  spektra inframerah dengan variasi waktu kristalisasi dan *template* yang menunjukkan gerakan khas dari struktur yang berbeda.

Puncak dari spektra inframerah pada daerah sensitif di 1200 dan  $545 \text{ cm}^{-1}$  yang merupakan puncak spesifik ZSM-5 dan dikonfirmasi dengan pola XRD dari sampel tersebut sehingga dapat disimpulkan bahwa ZSM-5 telah terbentuk pada waktu kristalisasi 48 jam untuk *template* TPAOH dan 24 jam sampai 48 jam untuk *template* TPABr. Berdasarkan spektra inframerah dan pola XRD, pada waktu kristalisasi 24 jam dengan penggunaan *template* TPAOH menunjukkan kaolin yang sudah larut dan ZSM-5 yang belum terbentuk sempurna.

Bilangan gelombang di sekitar  $1091 \text{ cm}^{-1}$  menandakan vibrasi ulur asimetri internal yang sesuai dengan rasio Si/Al pada sampel zeolit. Pita ini akan bergeser ke bilangan gelombang yang lebih tinggi sama halnya dengan meningkatnya rasio Si/Al (Sohn dkk., 1986). Bilangan gelombang dari vibrasi ulur asimetri internal pada *template* TPABr menunjukkan puncak pada bilangan gelombang  $1076 \text{ cm}^{-1}$ , sedangkan vibrasi ulur asimetri internal pada *template* TPAOH menunjukkan puncak pada bilangan gelombang  $1081 \text{ cm}^{-1}$  pada waktu kristalisasi 48 jam. Pergeseran bilangan gelombang ini disebabkan oleh TPAOH yang mengandung silika lebih tinggi (*high silica*). Kandungan silika yang lebih tinggi ini akan menyebabkan pergeseran ke bilangan gelombang yang lebih besar.

Tabel 4.3 Puncak pada sampel dalam  $\text{cm}^{-1}$  spektra inframerah dengan variasi waktu kristalisasi dan *template*.

Sampel		Vibrasi Ulur Asimetri		Vibrasi Ulur Simetri	Struktur Pentasil	Vibrasi Tekuk T-O-T
		Eksternal	Internal			
TPABr	3 jam	-	1088	696, 794, 914	538	468
	6 jam	-	1087	696, 794, 914	538	470
	9 jam	-	1083	696, 794, 914	538	457
	12 jam	1211	1080	696, 792, 914	536	459
	24 jam	1218	1076	790	540	457
	48 jam	1222	1076	786	545	435
TPAOH	3 jam	-	1091	694, 794, 914	538	468
	6 jam	-	1083	696, 792, 912	536	468
	9 jam	-	1076	696, 792, 914	536	466
	12 jam	-	1085	698, 792, 914	538	468
	24 jam	-	1064	790	-	457
	48 jam	1200	1081	784	545	443

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***



## **BAB V**

### **KESIMPULAN**

#### **5.1 Kesimpulan**

Sintesis ZSM-5 dari kaolin Bangka dan abu sekam padi sebagai sumber silika dan alumina telah dipelajari. ZSM-5 disintesis untuk membandingkan *template* organik TPABr dan TPAOH menggunakan metode hidrotermal dengan variasi waktu kristalisasi 3, 6, 9, 12, 24, dan 48 jam. Berdasarkan hasil analisis difraksi sinar-X dan spektra inframerah menunjukkan bahwa ZSM-5 terbentuk pada sampel dengan waktu kristalisasi 24 dan 48 jam menggunakan *template* organik TPABr dan TPAOH. Berdasarkan intensitas yang diperoleh, *template* organik yang memiliki kristalinitas ZSM-5 lebih tinggi adalah TPABr dengan intensitas analsim yang rendah pada waktu kristalisasi 48 jam. AnalSIM terbentuk sebagai fasa yang tidak murni pada waktu kristalisasi 24 dan 48 jam menggunakan *template* organik TPABr dan TPAOH.

#### **5.2 Saran**

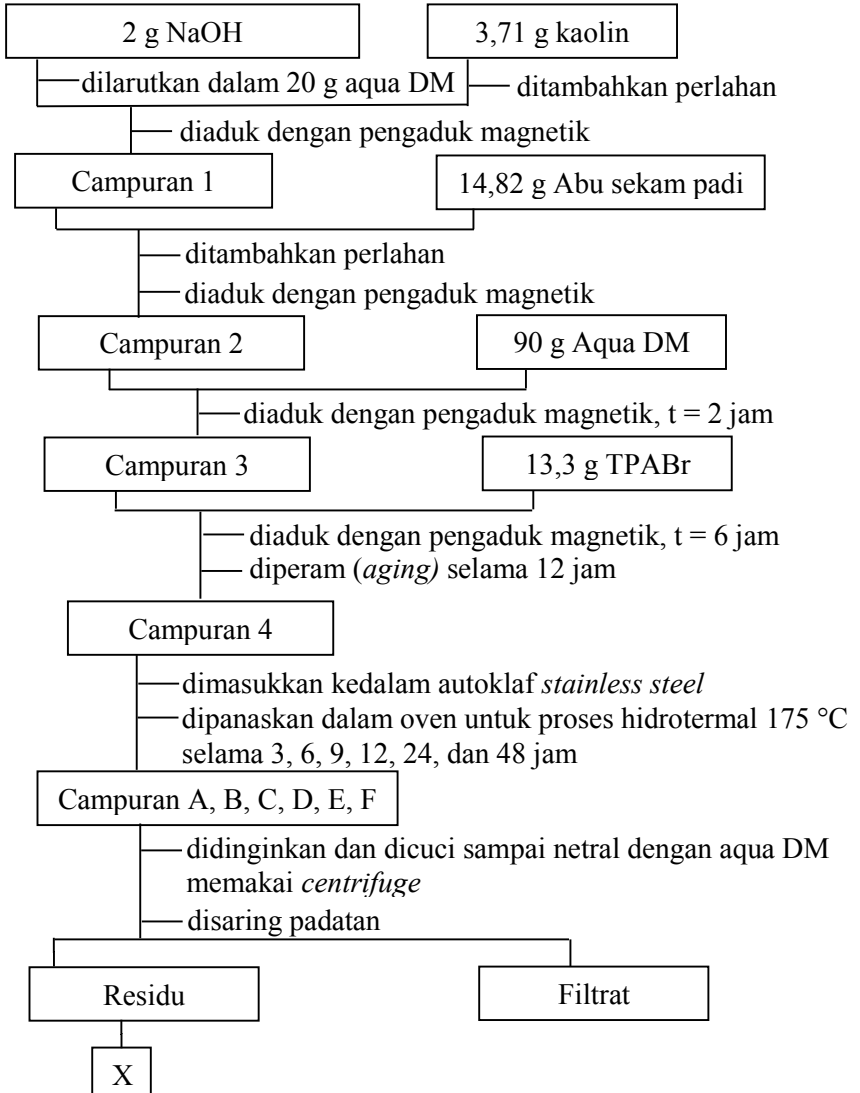
Pada penelitian selanjutnya untuk sintesis ZSM-5 disarankan untuk melakukan optimasi penggunaan *template* organik TPABr. Optimasi ini bertujuan untuk mendapatkan kristalinitas ZSM-5 yang tinggi dan mengurangi intensitas analsim agar didapat hasil ZSM-5 yang murni.

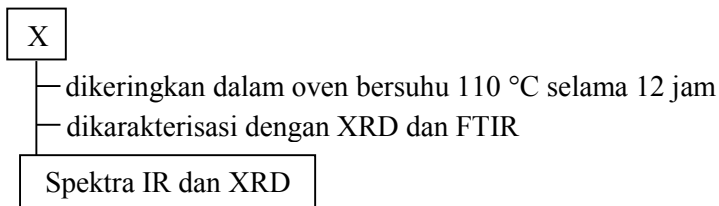
***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

## LAMPIRAN

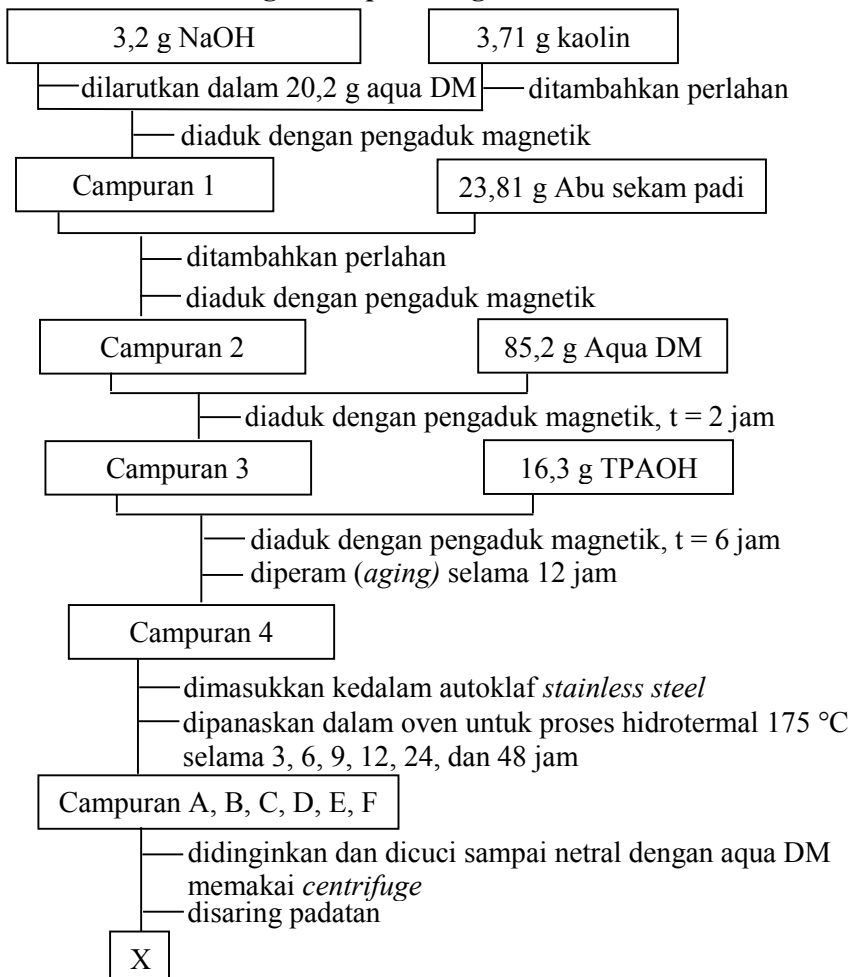
### LAMPIRAN A

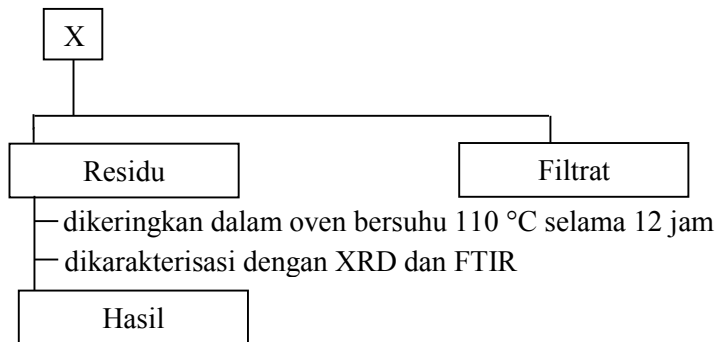
#### 1. Sintesis ZSM-5 dengan *Template* Organik TPABr





## 2. Sintesis ZSM-5 dengan *Template Organik* TPAOH





## LAMPIRAN B : PERHITUNGAN

### Perhitungan Komposisi Molar Larutan Sintesis ZSM-5

- Bahan yang digunakan dalam sintesis ZSM-5 ini antara lain:
  - Kaolin Bangka
  - Abu sekam padi
  - TPABr
  - TPAOH
  - NaOH
  - Air demineralisasi

- Komposisi pada masing-masing bahan tersebut:

- Kolin Bangka  
 Terdiri dari:  $\text{Al}_2\text{O}_3 = 22\%$   
 $\text{SiO}_2 = 47\%$

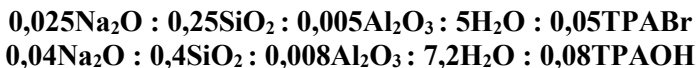
- Abu sekam padi  
 Terdiri dari:  $\text{SiO}_2 = 94\%$

- TPAOH  
 Terdiri dari:  $\text{TPA}^+ = 40\%$   
 $\text{H}_2\text{O} = 60\%$

- Perbandingan komposisi molar dari ZSM-5:



Karena keterbatasan bahan dan penyesuaian alat maka komposisi molar ini dibagi dengan 400 untuk TPABr dan 250 untuk TPAOH dan diperoleh komposisi seperti berikut:



- Perhitungan massa yang dibutuhkan pada masing-masing bahan untuk *template* TPABr yaitu:

- **0,005 mol  $\text{Al}_2\text{O}_3$**

Massa  $\text{Al}_2\text{O}_3$  yang dibutuhkan:

$$0,005 \text{ mol} \times 101,96 \text{ g/mol} = 0,5098 \text{ g}$$

%  $\text{Al}_2\text{O}_3$  dalam kaolin Bangka = 22%

Maka massa kaolin Bangka yang dibutuhkan :

$$\frac{\text{massa } \text{Al}_2\text{O}_3}{22\%} = \frac{0,5098 \text{ g}}{22\%} = 2,3173 \text{ g}$$

- **0,25 mol  $\text{SiO}_2$**

Massa  $\text{SiO}_2$  yang dibutuhkan:

$$0,25 \text{ mol} \times 60,08 \text{ g/mol} = 15,02 \text{ g}$$

%  $\text{SiO}_2$  dalam kaolin Bangka = 47%

Maka massa  $\text{SiO}_2$  dalam kaolin Bangka:

$$47\% \times \text{massa kaolin} = 47\% \times 2,3173 \text{ g} = 1,0891 \text{ g}$$

Sehingga massa  $\text{SiO}_2$  yang diperlukan dari abu sekam padi:

Massa total  $\text{SiO}_2$  - massa  $\text{SiO}_2$  dalam kaolin

$$= 15,02 \text{ g} - 1,0891 \text{ g} = 13,9309 \text{ g}$$

%  $\text{SiO}_2$  dalam abu sekam padi = 94%

Maka massa abu sekam padi yang diperlukan:

$$\frac{\text{massa } \text{SiO}_2}{94\%} = \frac{13,9309 \text{ g}}{94\%} = 14,8195 \text{ g}$$

- **0,05 mol TPABr**

Massa TPABr yang dibutuhkan

$$= 0,05 \text{ mol} \times 266 \text{ g/mol} = 13,3 \text{ g}$$

- **5 mol  $\text{H}_2\text{O}$**

Massa  $\text{H}_2\text{O}$  yang dibutuhkan:

$$5 \text{ mol} \times 18 \text{ g/mol} = 90 \text{ g}$$

- **0,025 mol  $\text{Na}_2\text{O}$**

Dalam penelitian ini digunakan NaOH dengan korelasi jumlah mol ion  $\text{Na}^+$ .

Maka massa NaOH yang diperlukan:

$$2 \times 0,025 \text{ mol} \times 40 \text{ g/mol} = 2 \text{ g}$$

**Jadi, total jumlah bahan yang masuk ke dalam autoklaf =  
113,4368 g**

- Perhitungan massa yang dibutuhkan pada masing-masing bahan untuk *template* TPAOH yaitu:

**- 0,008 mol  $\text{Al}_2\text{O}_3$**

Massa  $\text{Al}_2\text{O}_3$  yang dibutuhkan:

$$0,008 \text{ mol} \times 101,96 \text{ g/mol} = 0,8157 \text{ g}$$

%  $\text{Al}_2\text{O}_3$  dalam kaolin Bangka = 22%

Maka massa kaolin Bangka yang dibutuhkan :

$$\frac{\text{massa } \text{Al}_2\text{O}_3}{22\%} = \frac{0,8157 \text{ g}}{22\%} = \mathbf{3,7076 \text{ g}}$$

**- 0,4 mol  $\text{SiO}_2$**

Massa  $\text{SiO}_2$  yang dibutuhkan:

$$0,4 \text{ mol} \times 60,08 \text{ g/mol} = 24,032 \text{ g}$$

%  $\text{SiO}_2$  dalam kaolin Bangka = 47%

Maka massa  $\text{SiO}_2$  dalam kaolin Bangka:

$$47\% \times \text{massa kaolin} = 47\% \times 3,7076 \text{ g} = 1,7426 \text{ g}$$

Sehingga massa  $\text{SiO}_2$  yang diperlukan dari abu sekam padi:

Massa total  $\text{SiO}_2$  - massa  $\text{SiO}_2$  dalam kaolin

$$= 24,032 \text{ g} - 1,7426 \text{ g} = 22,2894 \text{ g}$$

%  $\text{SiO}_2$  dalam abu sekam padi = 94%

Maka massa abu sekam padi yang diperlukan:

$$\frac{\text{massa } \text{SiO}_2}{94\%} = \frac{22,2894 \text{ g}}{94\%} = \mathbf{23,7121 \text{ g}}$$

**- 0,08 mol TPAOH**

Massa TPAOH yang dibutuhkan

$$= 0,08 \text{ mol} \times 266 \text{ g/mol} = \mathbf{16,2696 \text{ g}}$$

%  $\text{TPA}^+$  dalam air = 40%

$$40\% \times 16,2696 \text{ g} = 6,5078 \text{ g}$$

Massa  $\text{H}_2\text{O}$  dalam TPAOH = 60%

$$60\% \times 16,2696 \text{ g} = 9,7618 \text{ g}$$



- **7,2 mol H<sub>2</sub>O**

Massa H<sub>2</sub>O yang dibutuhkan:

$$7,2 \text{ mol} \times 18 \text{ g/mol} = 129,6 \text{ g}$$

Massa H<sub>2</sub>O yang perlu ditambahkan:

Massa total H<sub>2</sub>O – massa H<sub>2</sub>O dalam TPAOH

$$129,6 \text{ g} - 9,7618 \text{ g} = \mathbf{119,8382 \text{ g}}$$

- **0,04 mol Na<sub>2</sub>O**

Dalam penelitian ini digunakan NaOH dengan korelasi jumlah mol ion Na<sup>+</sup>.

Maka massa NaOH yang diperlukan:

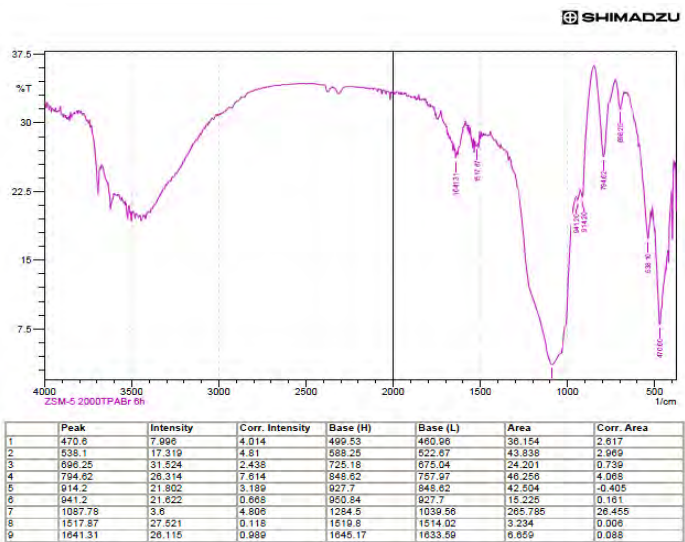
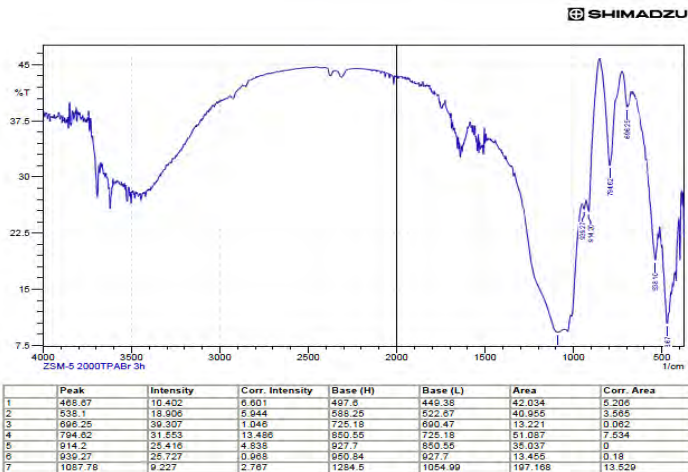
$$2 \times 0,04 \text{ mol} \times 40 \text{ g/mol} = \mathbf{3,2 \text{ g}}$$

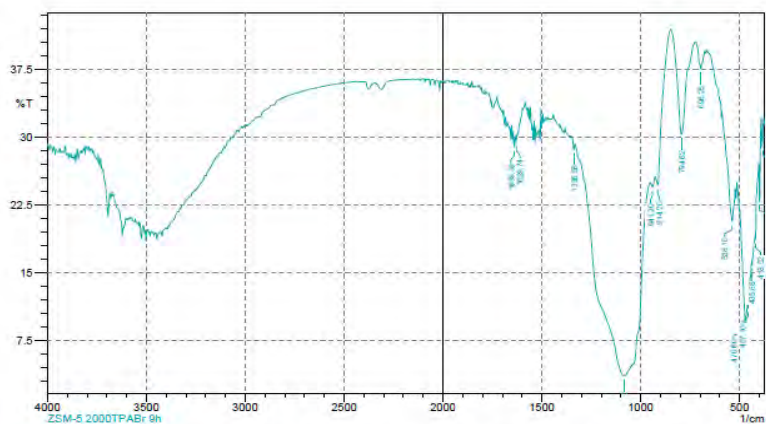
**Jadi, total jumlah bahan yang masuk ke dalam autoklaf  
= 166,733 g**

LAMPIRAN C: DATA KARAKTERISASI

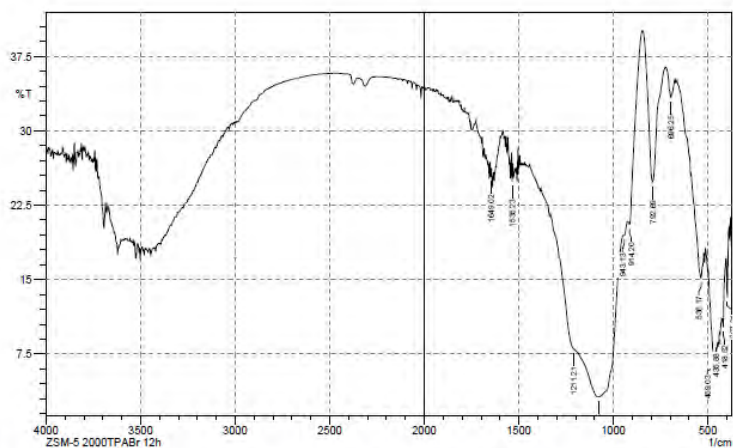
1. Data FTIR

a. Sintesis ZSM-5 menggunakan *template* TPABr dengan waktu kristalisasi berturut-turut 3, 6, 9, 12, 24, dan 48 jam

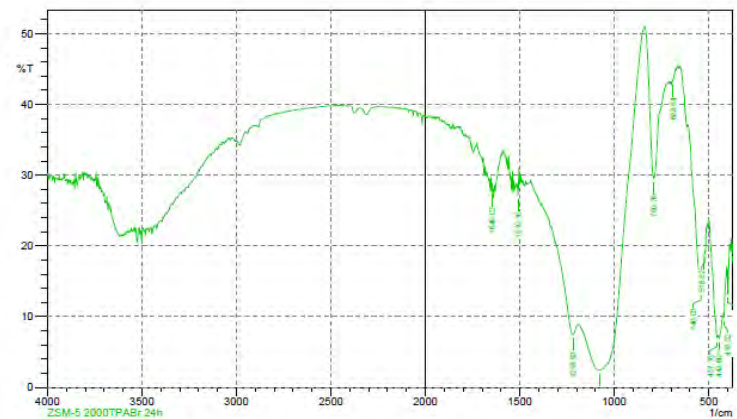




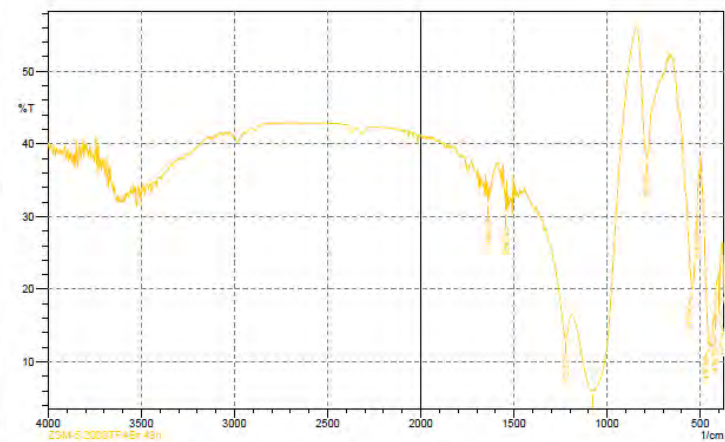
	Peak	Intensity	Corr. Intensity	Base (H)	Base (L)	Area	Corr. Area
1	383.81	28.937	2.808	389.59	379.95	5.012	0.206
2	399.24	22.852	4.733	401.17	381.52	5.504	0.423
3	418.52	18.687	1.992	422.38	403.09	12.134	0.109
4	435.88	15.879	1.077	439.74	422.38	13.175	0.166
5	457.1	11.026	1.212	460.96	439.74	18.478	0.27
6	470.6	9.437	4.651	497.6	460.96	32.291	2.573



	Peak	Intensity	Corr. Intensity	Base (H)	Base (L)	Area	Corr. Area
1	376.09	18.138	1.889	376.02	374.16	2.824	0.074
2	397.31	13.235	5.341	403.09	389.59	10.646	0.891
3	418.52	10.218	2.183	422.38	405.02	14.77	0.206
4	435.88	9.408	0.768	439.74	428.17	11.488	0.168
5	459.03	7.143	0.6	462.88	449.38	14.948	0.2
6	536.17	15.173	2.034	588.25	530.39	41.674	1.611



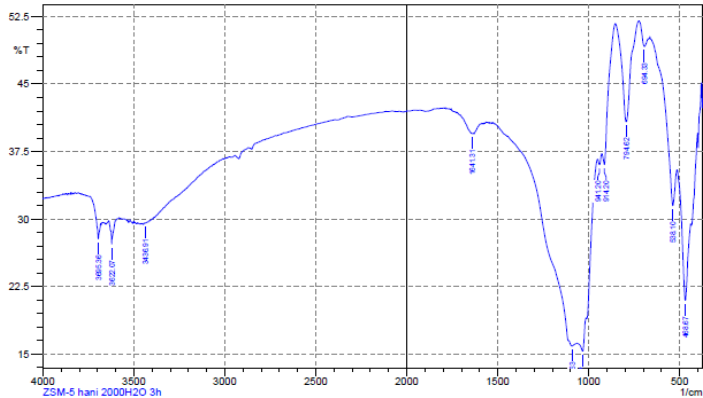
	Peak	Intensity	Corr. Intensity	Base (H)	Base (L)	Area	Corr. Area
1	378.09	18.97	1.5	379.95	374.16	4.06	0.074
2	397.31	13.184	5.296	403.09	389.59	10.638	0.859
3	418.52	6.928	1.499	420.45	405.02	13.185	0.107
4	443.6	6.922	1.107	449.38	428.17	23.312	0.751
5	457.1	6.934	2.695	497.6	449.38	43.968	1.271
6	518.82	18.917	0.943	520.74	509.17	7.796	0.077



	Peak	Intensity	Corr. Intensity	Base (H)	Base (L)	Area	Corr. Area
1	378.09	16.49	4.892	379.95	374.16	3.767	0.217
2	397.31	16.432	7.379	403.09	387.67	10.383	0.937
3	418.52	14.286	4.129	426.24	405.02	15.493	0.44
4	438.88	13.104	0.762	437.81	428.17	7.993	0.085
5	518.89	28.818	1.064	518.82	505.31	6.313	0
6	541.96	20.032	11.061	588.25	522.67	38.582	6.487

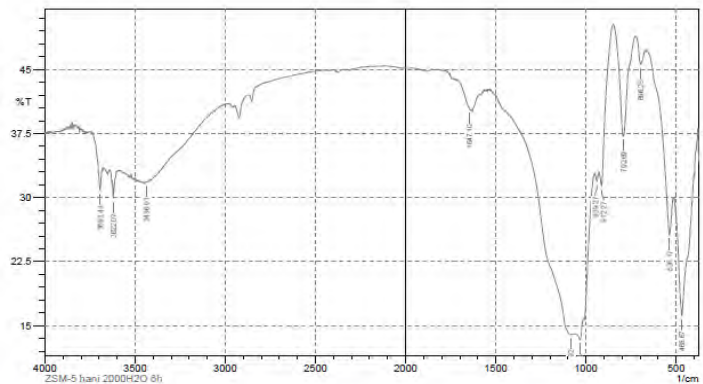
**b. Sintesis ZSM-5 menggunakan *template* TPAOH dengan waktu kristalisasi berturut-turut 3, 6, 9, 12, 24, dan 48 jam**

SHIMADZU

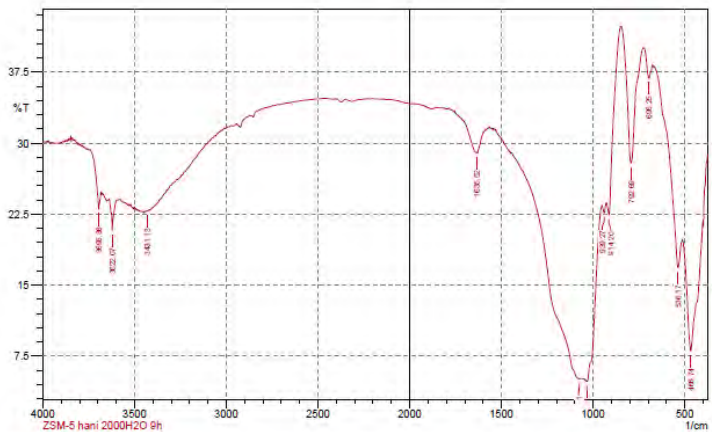


Peak	Intensity	Corr. Intensity	Base (H)	Base (L)	Area	Corr. Area
1	468.57	20.965	10.526	514.96	42.133	5.26
2	538.1	31.488	6.293	693.47	56.26	0.662
3	694.33	49.165	1.719	723.26	15.007	0.354
4	794.62	40.812	11.047	854.41	42.496	5.108
5	914.2	36.054	3.888	927.7	26.476	0.281
6	941.2	36.026	0.89	950.84	10.127	0.125

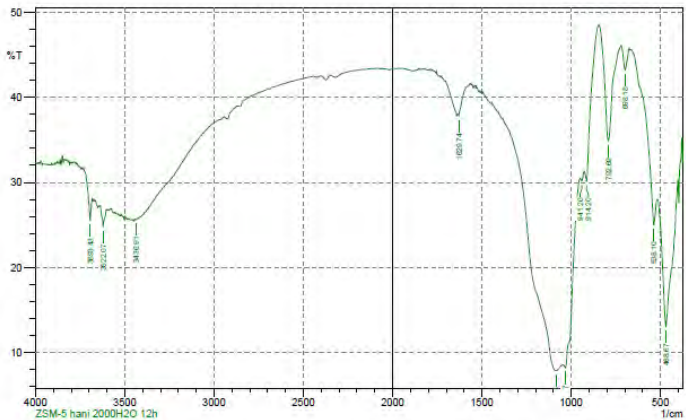
SHIMADZU



Peak	Intensity	Corr. Intensity	Base (H)	Base (L)	Area	Corr. Area
1	374.16	34.224	0	378.02	1.721	0.915
2	468.57	16.179	14.965	514.96	401.17	14.151
3	538.17	25.008	6.901	693.47	514.96	63.592
4	694.35	45.566	2.329	723.26	676.84	16.451
5	792.99	37.19	12.474	848.62	725.18	43.457
6	912.27	31.297	5.07	927.7	848.62	30.923

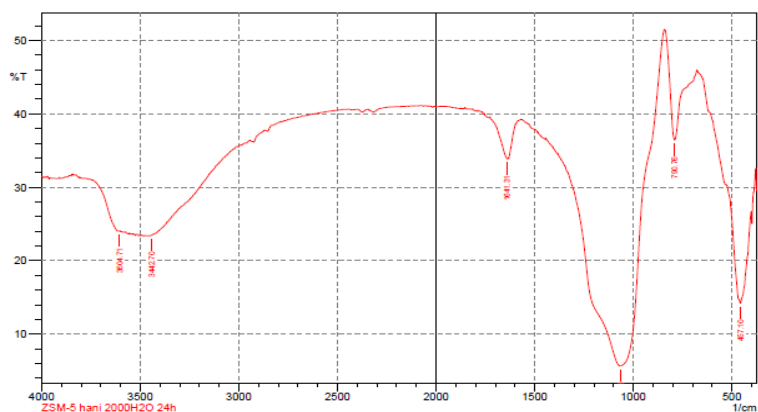


	Peak	Intensity	Corr. Intensity	Base (H)	Base (L)	Area	Corr. Area
1	466.74	8.062	7.654	513.03	437.51	68.210	6.646
2	536.17	16.863	5.784	663.47	513.03	85.639	1.242
3	694.25	36.856	2.225	721.33	675.04	19.428	0.573
4	792.69	27.885	13.42	848.62	725.18	55.46	7.604
5	914.2	22.423	4.47	927.7	848.62	36.591	0.116
6	939.27	22.623	0.943	952.77	927.7	15.952	0.208



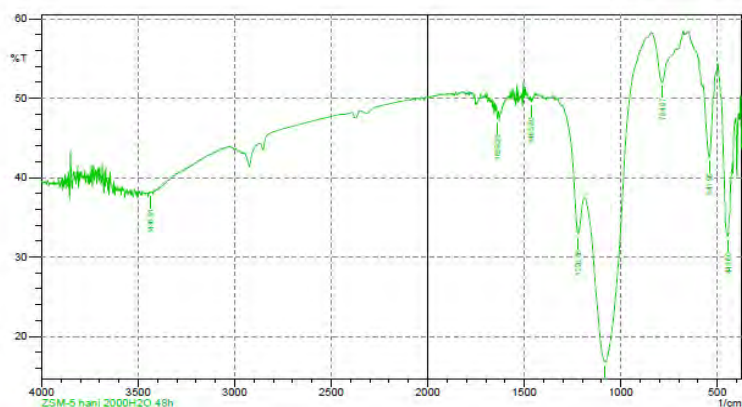
	Peak	Intensity	Corr. Intensity	Base (H)	Base (L)	Area	Corr. Area
1	466.67	13.023	9.892	516.59	439.74	55.57	7.169
2	536.1	25.014	6.143	597.59	516.59	40.634	2.15
3	698.18	43.194	2.763	719.4	675.04	15.581	0.6
4	792.69	34.877	12.655	844.76	719.4	46.963	6.213
5	914.2	30.136	3.996	927.7	844.76	33.575	-0.34
6	941.2	30.151	0.683	950.84	927.7	11.92	0.115

SHIMADZU



	Peak	Intensity	Corr. Intensity	Base (H)	Base (L)	Area	Corr. Area
1	457.1	14.216	14.056	532.32	403.09	88.658	18.249
2	790.76	36.435	11.962	840.91	719.4	45.228	6.085
3	1064.63	5.948	37.034	1332.72	940.91	376.132	185.928
4	1641.31	33.877	0.661	1691.46	1633.59	25.963	0.309
5	3442.7	23.459	0.059	3444.63	3427.27	10.89	0.006
6	3604.71	24.021	0.185	3743.57	3602.78	78.965	-0.318

SHIMADZU



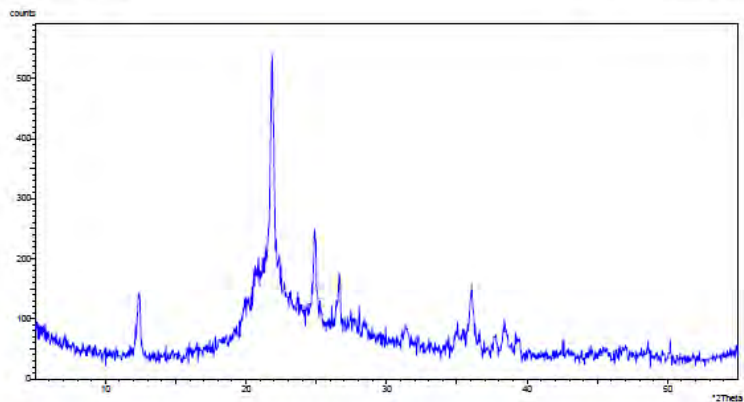
	Peak	Intensity	Corr. Intensity	Base (H)	Base (L)	Area	Corr. Area
1	443.6	32.573	2.236	449.38	422.38	11.893	0.259
2	541.96	42.549	8.187	572.82	520.74	17.462	2.208
3	790.76	51.979	5.281	840.91	719.4	31.646	2.134
4	1064.63	16.751	27.091	1188.07	840.91	160.613	45.943
5	1220.86	32.872	8.207	1284.5	1188.07	39.248	3.351
6	1465.8	49.541	0.492	1469.66	1463.87	1.754	0.015

## 2. Data XRD

- a. Sintesis ZSM-5 menggunakan *template* TPABr dengan waktu kristalisasi berturut-turut 3, 6, 9, 12, 24, dan 48 jam

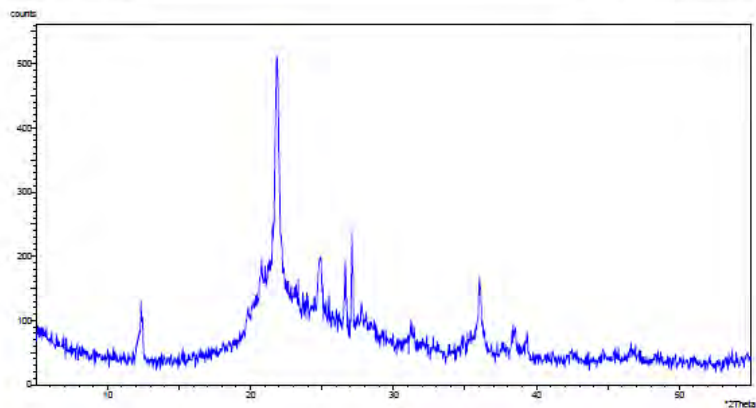
X'Pert Graphics & Identify  
Graph: 3h zeolit zsm5

User-1  
Date of Edition: 10/27/14 04:21



X'Pert Graphics & Identify  
Graph: 6h zeolit zsm5

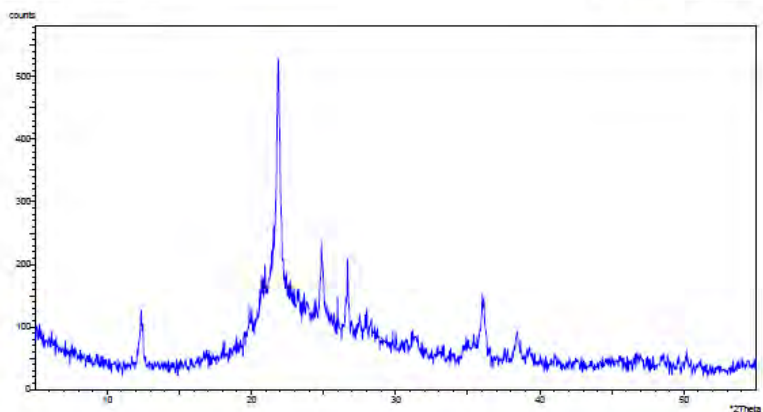
User-1  
Date of Edition: 10/27/14 04:25





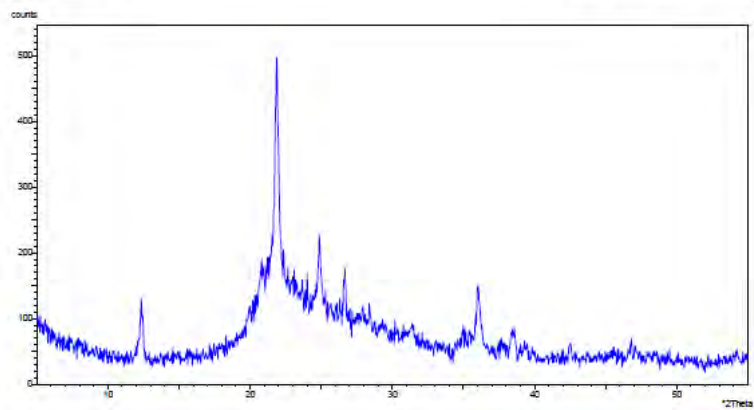
X'Pert Graphics & Identify  
Graph: 9h zeolit.zsm5

User-1  
Date of Edition: 10/27/14 04:27



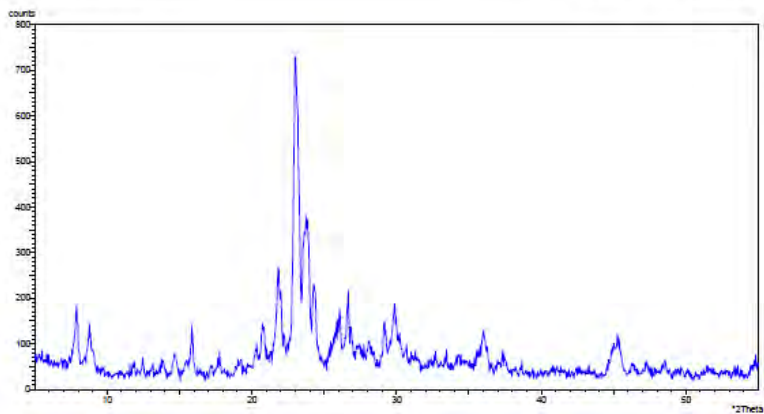
X'Pert Graphics & Identify  
Graph: 12h zeolit.zsm5

User-1  
Date of Edition: 10/27/14 04:16



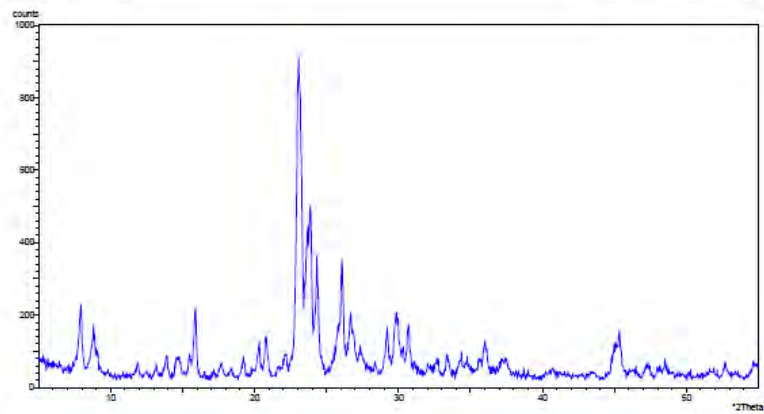
X'Pert Graphics & Identify  
Graph: 24h zeolit zsm5

User-1  
Date of Edition: 10/27/14 04:18



X'Pert Graphics & Identify  
Graph: 48h zeolit zsm5

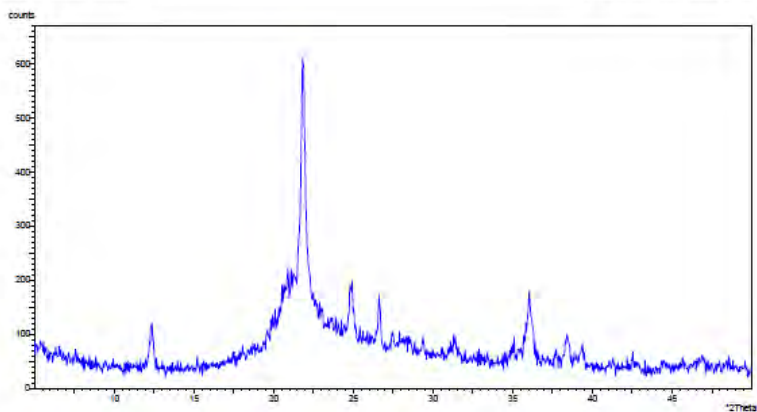
User-1  
Date of Edition: 10/27/14 04:23



**b. Sintesis ZSM-5 menggunakan *template* TPAOH dengan waktu kristalisasi berturut-turut 3, 6, 9, 12, 24, dan 48 jam**

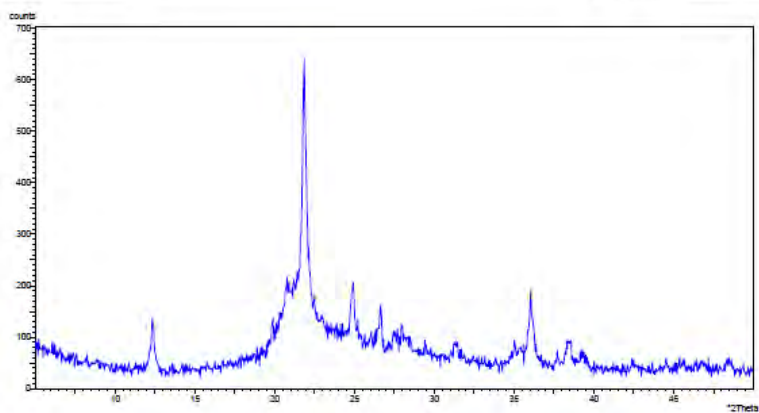
X'Pert Graphics & Identify  
Graph: zsm5-2000-3h

User-1  
Date of Edition: 10/17/14 06:11



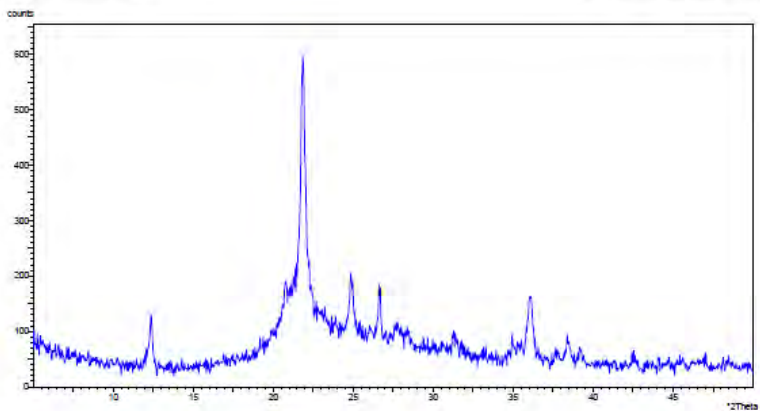
X'Pert Graphics & Identify  
Graph: zsm5-2000-6h

User-1  
Date of Edition: 10/17/14 06:14



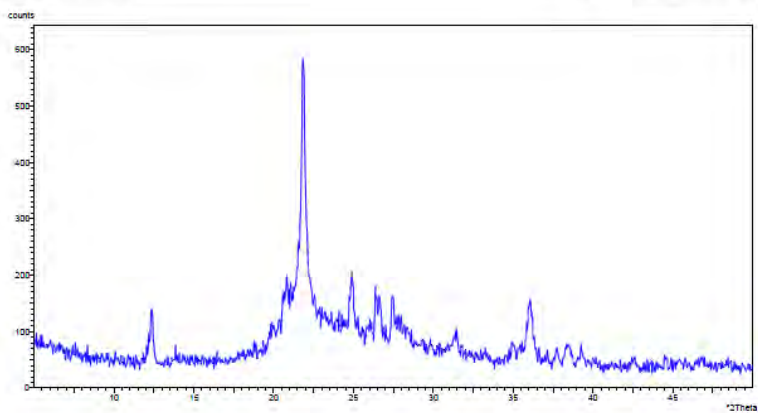
X'Pert Graphics & Identify  
Graph: zsm5-2000-9h

User-1  
Date of Edition: 10/17/14 06:16



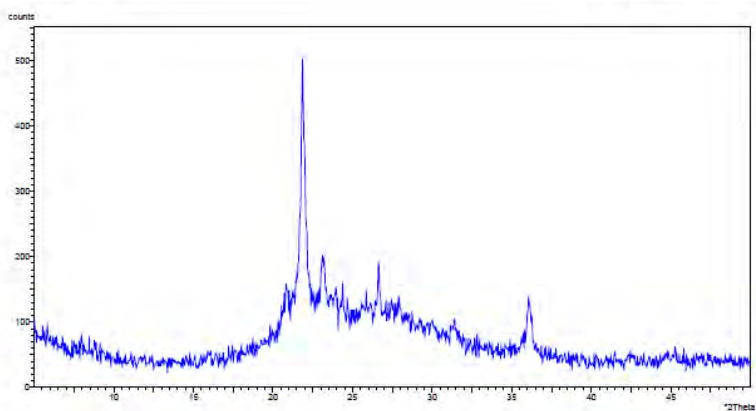
X'Pert Graphics & Identify  
Graph: zsm5-2000-12h

User-1  
Date of Edition: 10/17/14 06:06



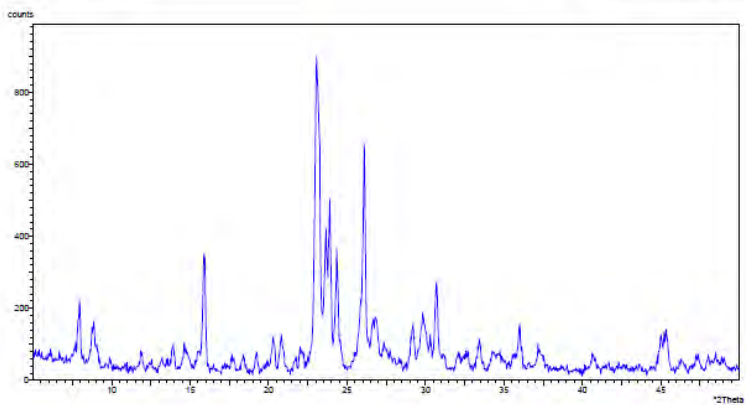
X'Pert Graphics & Identify  
Graph: zsm5-2000-24h

User-1  
Date of Edition: 10/17/14 06:08



X'Pert Graphics & Identify  
Graph: zsm5-2000-48h

User-1  
Date of Edition: 10/17/14 06:12



***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

## DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran A.	Skema Kerja.....	55
Lampiran B.	Perhitungan Komposisi Molar Larutan Sintesis ZSM-5.....	58
Lampiran C.	Data Karakterisasi .....	62

## DAFTAR PUSTAKA

- Atta, Y.A., Jibril, Y.B., Aderemi, O.B., Adefila, S.S., 2012. "Preparation of Analcime from Local Kaolin and Rice Husk Ash". **Applied Clay Science** 61, 8-13.
- Barrer, R.M., 1982. **Hydrothermal Chemistry of Zeolites**, London: Academic Press.
- Breck, D.W., 1974. **Zeolite Molecular Sieves: Structure, Chemistry, and Uses**. New York: John Wiley.
- Breck, D.W., 1987. **Handbook of Hydrothermal Technology a Technology for Crystal Growth and Materials Processing**. New Jersey: Noyes Publications.
- Brundle, C.R., Charles A.E., Shaun, W., 1992. **X-Ray Diffraction**. Encyclopedia of Material Characterization, Manning Publications Co.
- Byrappa, K., Yoshimura, M., 2001. **Handbook of Hydrothermal Technology: A Technology for Crystal Growth and Materials Processing**. New Jersey: Noyes Publications.
- Cejka, J., Wichterlová, B., 2002. **Catalysis Review**. Sci Eng. 44, 375.
- Cejka, J., Bekkum, H., Corma, A., Schuth, F., 2007. "Introduction to Zeolite Science and Practice 3<sup>rd</sup> Revised Edition". Elsevier, Amsterdam.
- Chandrasekhar, S., dan Pramada, P.N., 1999. "Investigation on Synthesis of Zeolite NaX from Kerala Kaolin". **Journal of Porous Materials** 6, 283-297.



- Chandrasekhar, S., 1996. "Influence of Metakaolinization Temperature on the Formation of Zeolite 4A from Kaolin". **Clay Minerals** 31, 253-261.
- Cheetam, D.A., 1992. **Solid State Compound**. Oxford University Press, 234-237.
- Chester and Derouane, E.G., 2009. **Zeolite Characterization and Catalysis**. London: Springer.
- Cundy, C.S., Henry, M.S., Plaisted, R.J., 1995. "Investigation of Na, TPA-ZSM-5 Zeolite Synthesis by Chemical Methods". **Zeolites** 15, 342.
- Das, B.M., 1998. *Mekanika Tanah (Prinsip-prinsip) Geoteknis*. Jakarta: Erlangga.
- Feng, H., Chunti Li, Honghong Shan, 2009. "In-situ Synthesis and Catalytic Activity of ZSM-5 Zeolite". **Applied Clay Science** 42, 439-445.
- Fouad, O.A., Mohamed, R.M., Hassan, M.S., Ibrahim, I.A., 2006. "Effect of Template Type and Template/Silica Mole Ratio on the Crystallinity of Synthesized Nanosized ZSM-5". **Catalysis Today** 116, 82-87.
- Froment, G.F., W.J.H. Dehertog, A.J. Marchi, 1992. "Zeolite Catalysis in the Conversion of Methanol into Olefins". **Catalysis volume** 9, The Royal Society of Chemistry, Cambridge.
- Gabelica, G., Nagy, J.B., Debras, G. Derouanne, E.G., 1983. **In Proceedings of the 6th International Zeofite Conference**, 914.

- Hadi, S.H., 1993. “Pembuatan dan Karakterisasi Zeolit A dari Sekam Padi”, *Skripsi 86/57716/PA/3926 UGM*, Yogyakarta.
- Hamdan, H., 1992. “Introduction to Zeolites: Synthesis, Characterization, and Modification”, Universiti Teknologi Malaysia, Kuala Lumpur.
- Iliyas, A., Al-Khattaf, S., 2004. “Xylene Transformation over USY Zeolite: an Experimental Kinetic Study”. **Applied Catalysis A**, 269, 225-236.
- Ishizaki, K., Komareni, S., Nanko, M., 1998. **Porous Material Process Technology and Applications**. Netherlands: Kluwer Academic Publisher.
- Kahraman, S., Müşerref Ö., Yüksel S., İhsan B., 2005. “Characterization of Silica Polymorphs in Kaolins by X-ray Diffraction Before and After Phosphoric Acid Digestion and Thermal Treatment”. **Analytica Chimica Acta** 552, 201–206.
- Karimi, R., Bayati, B., Aghdam, N.C., Ejtemaee, M., Babaluo, A.A., 2012. “Studies of the Effect of Synthesis Parameters on ZSM-5 Nanocrystalline Material During Template-hydrothermal Synthesis in the Presence of Chelating Agent”. **Powder Technology** 229, 229-236.
- Kim, D.J., Chung H.S., 2003. “Synthesis and Characterization of ZSM-5 Zeolite from Serpentine”. **Applied Clay Science** 24, 69-77.

- Kirschhock, C.E.A., Ravishankar, R., Verspeurt, F., Grobet, P.J., Jacobs, P.A., dan Martens, J.A., 1999. "Identification of Precursor Species in The Formation of MFI Zeolite in The TPAOH-TEOS-H<sub>2</sub>O System". **Journal of Physics and Chemistry B** 103, 4965-4971.
- Koningsveld, H.V., Bekkum, H.V., Jansen, J.C., 1987. "On the Location and Disorder of the Tetrapropylammonium (TPA) Ion in Zeolite ZSM-5 with Improved Framework Accuracy". **Acta Crystallography**. B43, 127-132.
- Kordatos, K., Gavela, S., Ntziouni, A., Pistiolas, K.N., Kyritsi, A., Kasselouri-Rigopoulou, V., 2008. "Synthesis of Highly Siliceous ZSM-5 Zeolite using Silica from Rice Husk Ash". **Microporous and Mesoporous Materials** 115, 189-196.
- Li, Z., Browman, R.S., 1998. "Sorption of Perchloroethylene by surfactant-modified Zeolite Controlled by Surfactant Loading". **Environmental Science & Technology** 32, 2278.
- Lobachev, A.N., 1973. **Crystallization Processes Under Hydrothermal Conditions**. 1-255. New York: Consultants Bureau.
- Louis, B., Kiwi-Minsker, L., 2004. "Synthesis of ZSM-5 Zeolite in Fluoride Media: an Innovative Approach to Tailor Both Crystal Size and Acidity". **Microporous and Mesoporous Materials** 74, 171-178.
- Mazak, M. A., 2006, "Modified Zeolite Beta As Catalysts In Friedel-Crafts Alkylation Of Resorcinol", *Thesis Chemistry*, UTM, Malaysia.

- Mignoni, M.L., Diego, I., Petkowicz, Nádia, R.C., Machado, F., Sibebe, B.C., Pergher. 2008. "Synthesis of Mordenite using Kaolin as Si and Al Source", **Applied Clay Science** 41, 99–104.
- Mohamed, R.M., Aly, H.M., El-Shahat, M.F., Ibrahim, I.A., 2005. "Effect of the Silica on Crystallinity of Nanosized ZSM-5 Zeolite". **Microporous and Mesoporous Materials** 79, 7-12.
- Murray, H.H., 2007. "Applied Clay Mineralogy Occurrences, Processing and Application of Kaolins, Bentonites, Palygorskite-Sepiolite, and Common Clays". Elsevier's Science & Technology Right Department in Oxford, UK.
- Murray, H.H., 2000. "Traditional and New application for Kaolin, smectite, and Palygorskite: a general Overview". **Applied Clay Science** 17, 207-221.
- Narayanan, S., Asima S., Quoc, T.L., Aline, N., 1998. "A Comparative and Multitechnical approach to the Acid Character of Templated and Non-templated ZSM-5 Zeolites". **Catalysis A: General** 168, 373-184.
- Othmer, K., 1993. **Encyclopedia of Chemical Technology**. New York: Wiley Interscene.
- Pan, F., Lu, X., Wang, Y., Chen, S., Wang, T., Yan, Y., 2014. "Synthesis and Crystallization Kinetics of ZSM-5 without Organic Template from Coal-series Kaolinite". **Microporous and Mesoporous Materials** 184, 134-140.
- Perego, C., Villa P., 1997. "Catalyst Preparation Methods". **Catalysis Today** 34, 281-305.

- Petushkov, A., Yoon, S., dan Larsen, S.C., 2011. "Synthesis of Hierarchical nanocrystalline ZSM-5 with Controlled Particle Size and Mesoporosity". **Microporous and Mesoporous Materials** 137, 92-103.
- Prasad C.S., Maiti, K.N., Venugopal R., 2001. "Effect of Rice Husk Ash in Whiteware Compositions". **Ceramic International** 27, 629-635.
- Rashad, A.M. 2013. "Metakaolin as Cementitious Material: History, Scours, Production and Composition A Comprehensive Overview". **Construction and Building Materials** 41, 303-318.
- Rustam, 2013. "Direct Synthesis of ZSM-5 from Kaolin the Presence of TPABr and TPAOH as Organic Templates, Thesis Kimia ITS, Surabaya.
- Saikia, N.J., Bharali, D.J., Sengupta, P., Bordoloi, D., Goswamee, R.L., Saikia, P.C., Bothakur, P.C., 2003. "Characterization, Beneficiation and Utilization of a Kaolinite Clay from Assam, India". **Applied Clay Science** 24, 93-103.
- Shiralkar, V.P., Clearfield, A., 1989. "Synthesis of the Molecular Sieve ZSM-5 without the Aid of Templates". **Journal of Zeolites** 9, 363-370.
- Shukla, D. B., Pandya, V. P., 1989. "Estimation of Crystalline Phase in ZSM-5 Zeolites by Infrared spectroscopy". **Journal Chemical Technology Biotechnol** 44, 147-154.
- Sibilia, P., 1996. **Guide to Material Characterization and Chemical Analysis, Second Edition**. New York: John Wiley-VCH.

- Smart, L., Moore, E., 1993. **Solid State Chemistry: An Introduction**. London: Chapman & Hall University and Professional Division.
- Sohn, J.R., DeCaino, S.J., Lunsford J.H., O'Donnell D.J., 1986. "Determination of Framework Aluminium Content in Dealuminated Y-type Zeolites: a Comparison based on Unit Cell Size and Wavenumber of i.r. Bands". Department of Chemistry, Texas A & M University, USA.
- Suseno, A., Arnelli, 2003. "Modifikasi Pori Zeolit Alam Menggunakan Lauril Benzil dimetil ammonium klorida sebagai Molekul Pengarah". *Laporan Penelitian*, FMIPA UNDIP, Semarang.
- Tanaka, H., Eguchi, H., Fujimoto, S., dan Hino, R., 2006. "Two Step Process for Synthesis of Single Phase Na-A Zeolite from Coal Fly Ash by Dialysis". **Fuel** 85, 1329.
- Treacy, M.M.J., Higgins, J.B., 2001. "Collection of Stimulated XRD Powder Patterns for Zeolites". Amsterdam : Elsevier.
- Vansant, E.F., 1990. **Pore Size Engineering in Zeolite**. New York: J W and Sons.
- Vesely, D., Kalendova, A., Manso, M.V., 2012. "Properties of Calcined Kaolins in Anticorrosion Paints Depending on PVC, Chemical Composition and Shape of Particles". **Progress in Organic Coating** 74, 82– 91.

- Wang, P., Shen., B., Shen, D., Gao, J., 2007. "Synthesis of ZSM-5 Zeolit from Expanded Perlite and its Catalytic Performance in FCC Gasoline Aromatization". **Catalysis Today** 125, 155-162.
- Wang, P., Shen, B., Shen, D., Peng, T., Gao, J., 2007." Synthesis of ZSM-5 Zeolite from Expanded Perlite/Kaolin and its Catalytic Performance for FCC Naptha Aromatization". **Catalysis Communications** 8, 1452–1456.
- Whan, R.W., 1992. **X-Ray Spectrometry**. ASM Handbook Volume 10: Materials Characterization, American Society for Metals.
- Zones, S.I., Nakagawa, Y., and Rosenthal, J.W., 1994. **Factors Affecting the Selectivities of Organocation Guest Moleculs in the Synthesis of High silica Zeolites, in the Synthesis of Microporous Materials**, Vol II Eds M.I., Occelli and H.E. Robson, Van Nostrand Reinhold, New York.

## BIODATA PENULIS



Penulis bernama lengkap Hani Rahmawati dan biasa dipanggil Hani. Penulis dilahirkan di Balikpapan, 8 Juni 1993, merupakan anak ketiga dari tiga bersaudara Pendidikan formal yang telah ditempuh oleh penulis, yaitu di TK Nasional KPS (1998-1999), SD Nasional KPS (1999-2005), SMP Nasional KPS (2005-2008) dan SMA Negeri 1 Balikpapan (2008-2011). Setelah lulus dari SMA Negeri 1

Balikpapan, penulis mengikuti SNMPTN dan diterima di jurusan Kimia ITS Surabaya pada tahun 2011 serta terdaftar dengan NRP. 1411 100 077. Di Jurusan Kimia ini, Penulis mengambil bidang minat Kimia Material dan Energi dibawah bimbingan Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc. Selama kuliah, penulis pernah aktif dalam organisasi kemahasiswaan yaitu Himpunan Mahasiswa Kimia (HIMKA) sebagai staff ahli Departemen Hubungan Luar (2013-2014) dan mengikuti beberapa pelatihan serta menjadi panitia kegiatan diberbagai kegiatan baik dalam lingkup HIMKA, BEM FMIPA dan BEM ITS. Selain itu, penulis juga pernah melakukan Kerja Praktek di laboratorium Chevron Indonesia Company Terminal Lawe-Lawe selama 1 bulan. Semoga hasil penelitian ini dapat memberikan manfaat bagi para pembaca dan memberikan inspirasi untuk kemajuan ilmu pengetahuan, khususnya di bidang ilmu Kimia. Penulis dapat dihubungi melalui *email* [hanirahmawati93@gmail.com](mailto:hanirahmawati93@gmail.com).



***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***